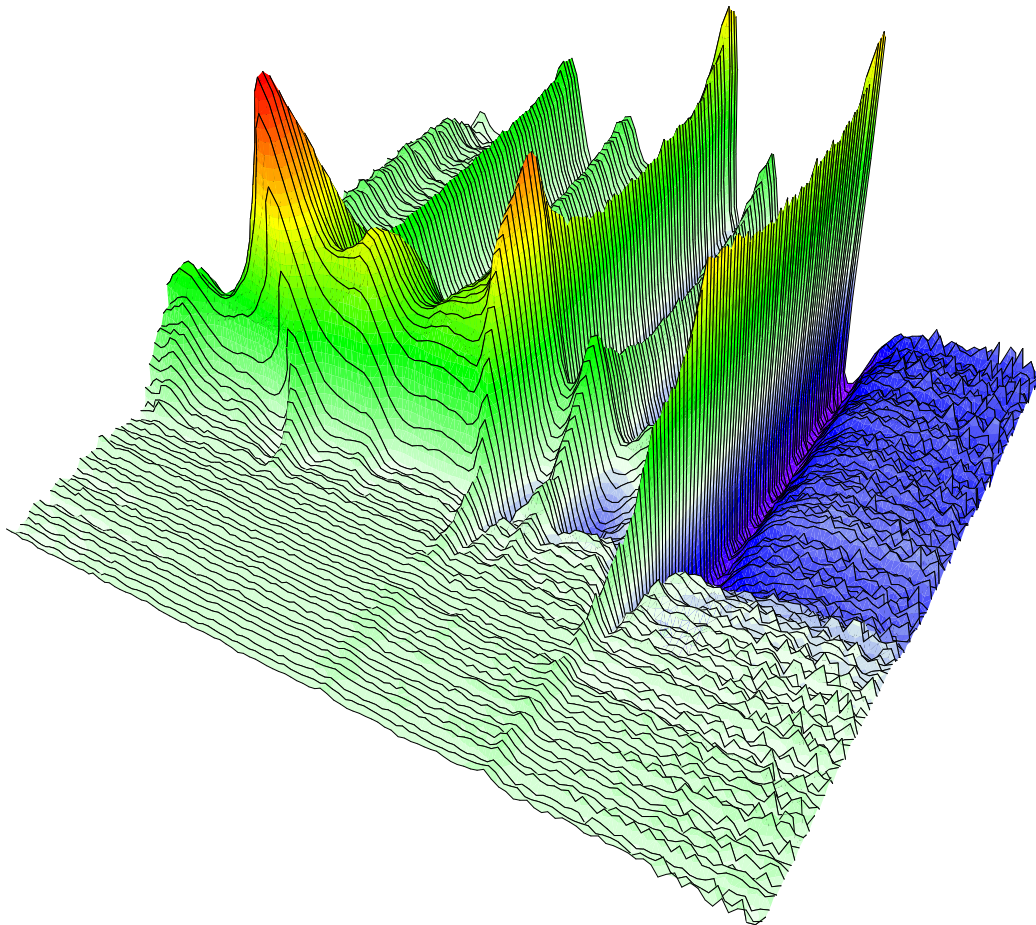


Halbleiternanostrukturen auf Silizium: Ladungsträgerdynamik, optischer Verstärker und Laser

CHRISTOPH LANGE



Marburg/Lahn, 2008

Halbleiternanostrukturen auf Silizium: Ladungsträgerdynamik, optischer Verstärker und Laser

DISSERTATION

zur Erlangung des
DOKTORGRADES DER NATURWISSENSCHAFTEN
(DR. RER. NAT.)

dem Fachbereich Physik
der Philipps-Universität Marburg



vorgelegt von
Christoph Lange
aus Frankenberg

Marburg/Lahn, 2008

Vom Fachbereich Physik der Philipps-Universität Marburg
als Dissertation angenommen am: 31.10.2008

Erstgutachter: Prof. Dr. W. W. Rühle
Zweitgutachter: Prof. Dr. S. W. Koch

Tag der mündlichen Prüfung: 11.12.2008

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	III
1 Einleitung	1
2 Transiente Weißlicht-Absorptionsspektroskopie	5
2.1 Einleitung	5
2.1.1 Messprinzip	5
2.1.2 Anregung	6
2.1.3 Abfrage	8
2.1.4 Spektrometer	12
2.1.5 Technische Umsetzung der Absorptionsmessung	12
2.2 Referenzsysteme (GaIn)As, (GaIn)(NAs)	15
2.2.1 Probenstrukturen	15
2.2.2 Dynamik der Absorption von (GaIn)As	17
2.2.3 Verstärkung in (GaIn)As	20
2.2.4 Verstärkung in (GaIn)(NAs)	25
2.2.5 Ultrakurzzeitmessungen an (GaIn)As	27
2.3 Ge/SiGe Multiquantenfilme auf Silizium	32
2.3.1 Probenstruktur	35
2.3.2 Wachstum	36
2.3.3 Ultrakurzzeitdynamik	37
2.3.4 Ultrakurzzeitverstärkung	48
2.3.5 Verstärkung im Quasigleichgewicht	52
2.4 Zusammenfassung	59
3 Verstärkungsspektroskopie nach der Strichlängenmethode	61
3.1 Methodik	61
3.2 Numerische Auswertung	64
3.2.1 Numerische Betrachtung zur Rauschanfälligkeit	67
3.2.2 Experimenteller Vergleich der Methoden	73
3.2.3 Zusammenfassung	81
3.3 Ladungsträgerverarmung bei hoher Verstärkung	82
3.3.1 Theoretisches Modell	82

3.3.2	Ergebnisse	84
3.3.3	Zusammenfassung	91
3.4	Verstärkung an Ga(NAsP) Quantenfilmen auf Silizium	92
3.4.1	Probenstruktur	93
3.4.2	Verstärkung	95
3.4.3	Zusammenfassung	97
3.5	Verstärkung an Ga(AsSb) Quantenpunktsystemen	97
3.5.1	Zusammenfassung	100
4	Laser auf Silizium	101
4.1	Photolumineszenzspektren	103
4.2	Modenspektren	105
4.3	Schwellverhalten	110
4.4	Zusammenfassung	111
5	Zusammenfassung	113
6	Anhang	117
6.1	Halbleiter-Bloch-Gleichungen	117
6.2	Selbstphasenmodulation	120
6.3	Absorptionsmessung unter Einbeziehung der Reflexion	122
6.4	Zeitlicher Verlauf des Fermi-niveaus (Probe <i>12934</i>)	124
6.5	Beispiel für stark ausgeprägte kohärente Oszillationen an GaAs (Probe <i>II3847</i>)	126
	Literaturverzeichnis	129
	Veröffentlichungen	137
	Danksagung	141

Abbildungsverzeichnis

2.1	Schema zum Anrege-Abfrage-Aufbau	7
2.2	Spektrum des Weißlicht-Superkontinuums	9
2.3	Energieabhängiger Zeitnullpunkt des Weißlichts	11
2.4	Lineare Absorption (Probe <i>mod24</i>)	17
2.5	Differentielle Absorption (Probe <i>mod24</i>)	19
2.6	Verstärkung, Experiment und Theorie (Probe <i>mod24</i>)	21
2.7	Zeitlicher Verlauf der Ladungsträgerdichte (Probe <i>mod24</i>)	23
2.8	Aufschlüsselung der Zerfallskanäle (Probe <i>mod24</i>)	24
2.9	Abkühlen und Rekombination im Elektronensystem (Probe <i>12934</i>)	25
2.10	Verstärkungsspektren im Materialsystem (GaIn)(NAs) (Probe <i>12934</i>)	27
2.11	Nichtthermische Verteilung, diff. Absorption (Probe <i>23454</i>)	29
2.12	Transienten der diff. Absorption (Probe <i>23454</i>)	30
2.13	Schema der Bandstruktur von Silizium (Volumenmaterial)	32
2.14	Schema der Bandstruktur von Germanium (Volumenmaterial)	33
2.15	Probenstruktur (Probe <i>8009</i>)	35
2.16	Lineare Absorption (Probe <i>8009</i>)	37
2.17	Bandstrukturextrema nach $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ -Theorie (Probe <i>8009</i>)	38
2.18	Differentielle Absorption (Probe <i>8009</i>)	41
2.19	Nichtthermische Verteilungen (Probe <i>8009</i>)	43
2.20	Transienten zur Kaskadenrelaxation (Probe <i>8009</i>)	45
2.21	Streuzeiten bei Tief- und Raumtemperatur (Probe <i>8009</i>)	47
2.22	Ultrakurzzeitverstärkung in den Germaniumquantenfilmen (Probe <i>8009</i>)	49
2.23	Ultrakurzzeitverstärkung in den Germaniumquantenfilmen, höchste Anregungsleistung (Probe <i>8009</i>)	51
2.24	Absorptionsdynamik bei langen Anregungsimpulsen (Probe <i>8009</i>)	53
2.25	Transienten bei variierender Temperatur, lange Anregungsimpulse (Probe <i>8009</i>)	54
2.26	Mechanismen zur Absorption freier Ladungsträger (Probe <i>8009</i>)	56
2.27	Extrapolierte Absorptionsdynamik im direkten Leitungsband bei langen Anregungsimpulsen (Probe <i>8009</i>)	57
3.1	Schema zum Strichlängenaufbau	63

3.2	lxl-Auswertung, Einfluss von Laserrauschen	69
3.3	lxl-Auswertung, Einfluss der Probenqualität	70
3.4	lxl-Auswertung, Einfluss des Detektorrauschens	71
3.5	Probenstruktur (Probe <i>B812/9mm</i>)	74
3.6	Transmissionselektronenmikroskopaufnahme (Probe <i>B808/6mm</i>) . .	75
3.7	Emissionsspektren (Probe <i>B812/9mm</i>)	76
3.8	Errechnete Verstärkung als Funktion des Strichlängenfensters	77
3.9	Experimenteller Vergleich der Auswertemethoden	79
3.10	Konvergenz der Verstärkung bei der lxl-Methode	80
3.11	Simulation Ladungsträgerverarmung: Verstärkungsspektren	85
3.12	Simulation Ladungsträgerverarmung: Dichtepprofile	86
3.13	Simulation Ladungsträgerverarmung: Photonendichte	87
3.14	Simulation Ladungsträgerverarmung: Kantenemission	88
3.15	Simulation Ladungsträgerverarmung: Auswertung	90
3.16	Probenstrukturen (Proben <i>GaNAsP-1</i> , <i>GaNAsP-2</i> , <i>GaNAsP-3</i>) . .	94
3.17	Schema der Bandanordnung (Proben <i>GaNAsP-1</i> , <i>GaNAsP-2</i> , <i>GaNAsP-3</i>)	95
3.18	Verstärkungsspektren (Probe <i>GaNAsP-1</i>)	96
3.19	Verstärkungsspektren (Probe <i>B809/1mm</i>)	98
3.20	Verstärkungsspektren (Probenserie <i>B8xx/ynm</i>)	99
4.1	Photolumineszenz bei 10 K (Probe <i>GaNAsP-2</i>)	104
4.2	Photolumineszenz bei 75 K (Probe <i>GaNAsP-2</i>)	105
4.3	Photolumineszenz bei 200 K (Probe <i>GaNAsP-2</i>)	106
4.4	Modenspektren, niedrige Leistung, 10 K (Probe <i>GaNAsP-2</i>)	107
4.5	Modenspektren, hohe Leistung, 10 K (Probe <i>GaNAsP-2</i>)	108
4.6	Verstärkung nach Hakki-Paoli (Probe <i>GaNAsP-2</i>)	109
4.7	Laserschwelle, verschiedene Temperaturen (Probe <i>GaNAsP-2</i>) . . .	110
6.1	Schema zur Selbstphasenmodulation	121
6.2	Experimenteller Anrege-Abfrage-Aufbau mit Reflexionsmessung . .	122
6.3	Abkühlung und Rekombination im Elektronensystem, Modell (Pro- be <i>12934</i>)	125
6.4	Stark ausgeprägte kohärente Oszillationen bei GaAs (Probe <i>II3847</i>)	127

1 Einleitung

Das zwanzigste Jahrhundert wurde wie kein anderes zuvor von einer Vielzahl wegweisender Erfindungen geprägt, die Produktionsprozesse, wirtschaftliche Abläufe, die globale Kommunikation und nicht zuletzt unser Weltbild entscheidend verändert haben. Eine der bedeutendsten davon war sicherlich der moderne Computer, dessen ersten Vertreter Konrad Zuse im Jahre 1937 mit der Z1 schuf. Diesem elektromechanischen System folgte ein Jahrzehnt später mit ENIAC der erste Röhrencomputer, der zwar rein elektrisch arbeitete, aber immer noch einen immensen Platz- und Strombedarf hatte. Die Erfindung des Transistors im gleichen Jahrzehnt legte den Grundstein zur Miniaturisierung und öffnete das Tor zu einer neuen Klasse von Computern.

Trotz dieser Fortschritte erlaubte erst die von Historikern als zweite industrielle Revolution bezeichnete Phase der Automatisierung und Integration in den Siebzigerjahren das Herstellen von hochintegrierten Transistorschaltungen. Mit der Fertigung der ersten LSI¹-Schaltungen begann eine beispiellose Entwicklung, die eine exponentielle Zunahme der Transistordichte bei immer größeren Taktfrequenzen mit sich brachte. Dieser als Moore'sches Gesetz² bekannte Zusammenhang hat es ermöglicht, dass Computer heute in nahezu allen Bereichen des täglichen Lebens, am Arbeitsplatz, in der Freizeit und nicht zuletzt in der Wissenschaft eine Schlüsselrolle einnehmen und unsere Welt wie kaum ein anderes Werkzeug zuvor dramatisch verändert haben. Computer steuern Prozessabläufe in der Produktion, regeln Verkehrsabläufe im Personen- und Güterverkehr, koordinieren wirtschaftliche Transaktionen und sparen durch numerische Rechnungen Entwicklungskosten ein.

Zum gegenwärtigen Zeitpunkt besitzt jeder sechste Mensch einen Computer, in 2014 werden es 2 Mrd. Stück sein [Shi08]. Der bahnbrechende Erfolg dieser Technologie, für die im Jahr 2008 weltweit ein Gewinn von knapp 300 Milliarden US-Dollar und gegen den derzeitigen allgemeinen Trend der Weltwirtschaft ein Wachstum

¹engl. **L**arge **S**cale **I**ntegration; Großskalige Integration, d.h. Integration von vielen Komponenten in einen Chip

²Moore'sches Gesetz: Im Jahr 1965 von Gordon Moore, Mitbegründer von *Intel*, formuliertes Gesetz, demnach sich die Integrationsdichte etwa alle 2 Jahre verdoppelt

von 4,6 % prognostiziert wurde [Gor08], ist wesentlich auf die physikalische und technische Eignung des in unbegrenzter Menge verfügbaren Halbleiters Silizium zurückzuführen. Das natürliche Oxid des Halbleiters, Siliziumdioxid, ist zudem ein exzellenter und durch Ionenimplantation leicht in den epitaktischen Prozess integrierbarer Isolator [Bla02]. Die Kombination aus vielseitigem Halbleiter und perfektem Isolator ermöglichte es, dass Siliziumchips heute mit einer Packungsdichte in der Größenordnung von fünf Milliarden Transistoren pro Quadratzentimeter³ gefertigt werden können und Vektorprozessorlösungen, die nicht mehr als 300 Euro kosten, über 10^{12} Operationen pro Sekunde bewältigen. Legierungen aus Silizium und Germanium erlauben durch die entstehende Verspannung des Kristallgitters Steigerungen der Ladungsträgermobilitäten, die in jüngster Zeit auch für Siliziumelektronik den Hochfrequenzbereich bis 500 GHz zugänglich gemacht [Kri06] und damit zu dem in diesem Bereich gängigeren Halbleiter Galliumarsenid aufgeschlossen haben.

Das im Bereich der Elektronik derart vielseitige Element findet auch in der Optoelektronik Verwendung, wo es sich als robustes Standardmaterial für Photodetektoren, analoge und digitale Bildgewinnung und Solarzellen etabliert hat. Die Emission von Licht jedoch ist durch die indirekte Bandstruktur des Halbleiters nur über einen ineffizienten phononenassistierten Prozess möglich, dessen Quasiimpulsbilanz über eine Gitterschwingung ausgeglichen wird. Zwar existieren Leuchtdioden auf Basis von Silizium, doch ist die stimulierte Emission viel zu unwahrscheinlich, um Laseraktivität zu ermöglichen. Trotz der enormen Fortschritte fehlt der Siliziumelektronik bislang der Laser, der die Siliziumphotonik in neue Bereiche vorstoßen ließe. Das mögliche Anwendungsspektrum eines Lasers auf Silizium deckt unter anderem die optische Datenübertragung auf verschiedensten Ebenen ab. Die Integration einer leistungsstarken Lichtquelle mit direkt angekoppeltem Lichtwellenleiter auf einem Chip, der gleichzeitig die Datenverarbeitung übernehmen kann, würde die Telekommunikation über große Strecken deutlich effizienter gestalten, da keine Kombination aus Mikrochip und separatem Emmitter mehr eingesetzt werden müsste. Auch für kurze Übertragungsstrecken würde der Preis auf ein Niveau sinken, das zu einer Vernetzung auf Basis von Kupferkabeln konkurrenzfähig wäre. Die mit Abstand interessanteste Anwendung mit hohem technologischen Potential wäre die optische Kommunikation innerhalb eines Mikroprozessors, die zu einer neuen Klasse von Daten verarbeitenden Prozessoren führen könnte und mit der auch die mittlerweile sehr dringenden Wärme- und Taktfrequenzprobleme eine Lösung fänden.

In dieser Arbeit werden zwei Ansätze für einen Laser auf einem hochkristallinen Siliziumsubstrat diskutiert. In Kapitel 4 werden die Ergebnisse zum ersten

³SRAM Zelle aus 6 Transistoren, Fläche im 32 nm-Prozess etwa $0,125\mu\text{m}^2$, [Ish08]

defektfreien, gitterangepassten, epitaktisch auf Silizium abgeschiedenen Laser diskutiert. Das quaternäre Halbleitermaterial Ga(NAsP), welches hoch verspannt auf Silizium aufgebracht wurde, weist bis zu einer Temperatur von 125 K Laseraktivität auf. Die Ergebnisse von Kapitel 3 zeigen, dass optische Verstärkung unter ähnlichen Anregungsbedingungen auch bei Raumtemperatur vorliegt. Diese vielversprechenden Resultate weisen den Weg für die zukünftige Entwicklung und zeigen das Potential dieses heterogenen Ansatzes auf, auch in Bezug auf einen Laser bei Temperaturen, wie sie für einen Mikroprozessor typisch sind.

In Kapitel 2 wird die Eignung von Germaniumquantenfilmen auf Silizium zur effizienten Emission von Licht untersucht. In der detaillierten Studie, die auch durch Rechnungen einer mikroskopischen Theorie gestützt wird, wird die Ultrakurzzeitdynamik der Absorption, der Ladungsträgerdichte und der Ladungsträgerstreuungsprozesse analysiert. Es zeigt sich unter anderem, dass auch in dem indirekten Halbleiter Germanium optische Verstärkung möglich ist, wenngleich zunächst nur auf einer Zeitskala von wenigen 10 fs. Die neuen Einsichten in das Verhalten dieses bereits so umfangreich untersuchten Materials sprechen dafür, dass es möglich ist, durch eine sehr starke Ladungsträgerpopulation temporär den direkten optischen Übergang zu aktivieren. Hierbei stellt sich eine Ladungsträgerkonfiguration ein, die sich grundlegend von der eines angeregten, direkten Halbleiters unterscheidet. Ein nach der Anregung auftretender, zusätzlicher Absorptionsmechanismus unterbindet zunächst die optische Verstärkung auf langen Zeitskalen, lässt aber auch das Potential von Germaniumquantenfilmen erkennen und zeigt eine Strategie für die weitere Verfeinerung des Materials auf.

Neben der Fokussierung auf Silizium als Lasermaterial werden in Kapitel 2 das transiente Verstärkungsverhalten an verschiedenen III-V-Halbleitern sowie die damit verbundene ultraschnelle Dynamik untersucht. Die spektral breitbandige Methode lässt Erkenntnisse zu ultraschnellen Umverteilungsprozessen im Elektronensystem nach optischer Anregung gewinnen und ermöglicht durch die hohe Leistung des anregenden Laserimpulses das Studium der Dynamik im nichtlinearen Bereich höchster Elektronendichten. Auch hier leistet der Vergleich mit der mikroskopischen Theorie einen wichtigen Beitrag zum Verständnis der zugrunde liegenden Mechanismen.

Eine eingehende Analyse der Messung der optischen Verstärkung nach der Strichlängenmethode wird in Kapitel 3 vorgenommen. Es werden eine Reihe im Rahmen des Experiments neu entwickelter Methoden zur Auswertung der experimentellen Daten vorgestellt, die eine Vielzahl von Problemen der aus der Literatur bekannten Methoden beheben und einen eindeutigen Gültigkeitsbereich definieren lassen. Des weiteren wird eine numerische Simulation durchgeführt, welche eine Betrachtung der Ladungsträgerdichte und Verstärkung entlang des

Strichs erlaubt und somit die zuvor experimentell gewonnenen Erkenntnisse zur Gültigkeit der Methode untermauert.

2 Transiente Weißlicht-Absorptionsspektroskopie

2.1 Einleitung

Das Verständnis der Dynamik des Elektronensystems eines Halbleiters und insbesondere der optischen Verstärkung stützt sich in dieser Arbeit auf die Dynamik der Absorption, ihrer zeitlichen Entwicklung nach einer Anregung und die über die spektrale Auflösung zugängliche Information über Umverteilungsprozesse der Ladungsträger. Im Folgenden soll ein kurzer Überblick über die verwendete experimentelle Technik, ihre Stärken und Schwächen und die daraus folgenden Konsequenzen für die Interpretation der Daten gegeben werden.

2.1.1 Messprinzip

Die Absorption von Licht in einem beidseitig an Luft angrenzenden Medium wird phänomenologisch durch das Bouguer-Lambert'sche Gesetz gemäß

$$I_{trans} = I_0 \cdot e^{-\alpha L} \cdot (1 - R)^2 \quad (2.1)$$

beschrieben. Die Intensität des transmittierten Lichts I_{trans} hängt exponentiell von der im Medium zurückgelegten Strecke L ab. Reflexionsverluste an beiden Grenzflächen sind über den Koeffizienten $(1 - R)^2$ mit einbezogen.

Um eine hohe zeitliche Auflösung optischer Größen wie der Absorption zu realisieren, greift man üblicherweise auf die Anrege-Abfrage- oder Pump-Probe-Spektroskopie [Sha96, Muk95, Hau04] zurück, die sich mit der Verfügbarkeit von Lasern mit ultrakurzen Impulsen in zahllosen Gebieten, auch außerhalb der Physik, etabliert hat. Seit fast zwei Jahrzehnten steht mit dem modengekoppelten Titan-Saphirlaser eine zuverlässige Strahlquelle zur Verfügung, die Laserimpulse von anfänglich mehreren 100 fs zu Verfügung stellte und heute bereits in den Bereich

von 5 fs vorgedrungen ist¹. Experimentell sind auf Basis anderer Impulslichtquellen und der Erzeugung vielfacher Harmonischer bereits Impulsdauern im Bereich von 100 as erreicht worden [San06].

Bei der Anrege-Abfrage-Spektroskopie wird die Probe zu einem definierten Zeitpunkt durch einen Laserimpuls angeregt und mit einem frei wählbaren zeitlichen Versatz die Messgröße mit einem zweiten typischerweise deutlich schwächeren Laserimpuls bestimmt. Durch Variation des zeitlichen Versatzes in einer Serie von Experimenten kann die zeitliche Charakteristik der Messgröße bestimmt werden. Die zeitliche Verzögerung wird üblicherweise durch eine Verzögerungsstrecke variabler Länge gewährleistet, über die einer der beiden Impulse geführt wird. Durch Verwendung von Piezoaktuatoren kann für sichtbares Licht eine phasensensitive Genauigkeit erreicht werden. Im konkreten Experiment wurde ein mittels eines Schrittmotors betriebener Linearschlitten vom Typ „Luge LM“² mit 1 m Verfahrweg verwendet, auf dem ein Retroreflektor montiert wurde. Der hiermit verzögerte Abfragestrahl wurde zweimal über die Strecke geführt, was einem maximalen Zeitbereich von über 10 ns entspricht. Die seitens der Mechanik vorgegebene zeitliche Auflösung betrug nominell etwa 2 fs.

2.1.2 Anregung

Die Strahlquelle des Aufbaus ist das für die Zeitauflösung und Spitzenleistung maßgebende Element. Für dieses Experiment kam ein mittels eines Festkörperlaser gepumptes Titan-Saphir-Verstärkerlaser-System vom Typ „Spitfire“³ zum Einsatz. Das System liefert bei einer Wiederholrate von 1 kHz hochenergetische, bandbreitebegrenzte Impulse von 120 fs Dauer (FWHM⁴) und 1,55 eV (800 nm) Photonenenergie. Die integrierte Energie eines Impulses beträgt etwa 1 mJ und die Spitzenleistung erreicht etwa 10 GW, woraus sich eine gemittelte Leistung von etwa 1 W errechnet. Etwa 99 % der Leistung des Verstärkers wird wie in Abb. 2.1 ersichtlich über einen Strahlteiler in einen OPA⁵ des Typs „TOPAS“⁶ eingekoppelt, der durch parametrische Verstärkung einer aus der Pumpquelle gewonnenen, spektral sehr breiten Superfluoreszenz eine Konversion der Photonenenergie ermöglicht. Bei diesem nichtlinearen optischen Prozess wird in einem β -Bariumboratkristall

¹Beispiel: FEMTOLASERS FEMTOSOURCE™ rainbow™, Spezifikation: $t_{FWHM} < 7$ fs

²Hersteller: Parker-Hannifin, Robert-Bosch-Straße 22, D-77656 Offenburg, Deutschland

³Hersteller: Spectra-Physics Lasers, Newport Corporation, 1791 Deere Avenue, Irvine, CA-92606, USA

⁴engl. **F**ull **W**idth at **H**alf **M**aximum

⁵engl. **O**ptical **P**arametric **A**mplifier

⁶Hersteller: Lightconversion Ltd., Sauletekio av. 10, LT-10223 Vilnius, Litauen

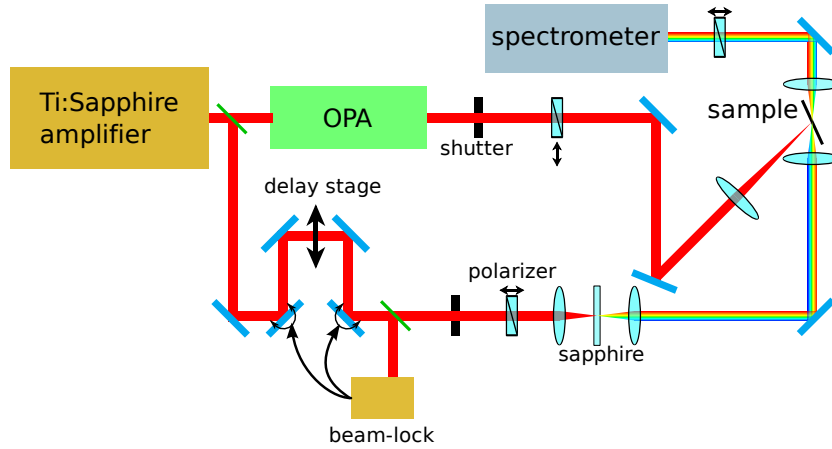


Abbildung 2.1: Schematischer Aufbau der Weißlicht-Anrege-Abfrage-Spektroskopie. Der Titan-Saphir-Verstärker erzeugt 120 fs kurze Pulse mit 1 kHz Wiederholrate bei 1,55 eV und 1 mJ Impulsenergie. Über einen Strahlteiler gelangen 99 % der Leistung in einen OPA, mit dem die Anregungsphotonenenergie in weiten Grenzen eingestellt werden kann. Die verbleibende Leistung dient zur Erzeugung des Weißlicht-Superkontinuums in einem Saphirkristall, welches dann durch die Probe transmittiert und in einem Spektrometer mit einer (GaIn)As-Photodiode detektiert wird. Eine elektromechanische Verzögerungsstrecke bestimmt den zeitlichen Versatz der Impulse beim Auftreffen auf die Probe. Beide Teilstrahlen werden jeweils durch einen elektromechanischen Schließer selektiv geschaltet.

eine Teilung des Pumpphotons in zwei als „Signal“ und „Idler“ bezeichnete Photonen erreicht. Die Summe der Energie der Photonen entspricht wieder der des Pumpphotons. Im nichtlinearen Kristall muss hierbei eine Phasenanpassungsbedingung erfüllt werden, die Energie- und Impulserhaltung gewährleistet. Für verschiedene Einfallswinkel der Pumpphotonen relativ zur Kristallachse werden Energie- und Impulserhaltung für unterschiedliche Separationsenergien erfüllt, so dass durch Rotieren des Kristalls die Energie für Signal- und Idlerphoton über einen weiten Bereich gewählt werden kann. Der OPA erlaubt zusätzlich das Frequenzverdoppeln eines der beiden erzeugten Teilstrahlen, so dass sich eine Durchstimmbarkeit von 2,25 eV (550 nm) bis 0,46 eV (2700 nm) mit Ausnahme eines kleinen Fensters um 1,11 eV (1120 nm) ergibt. Die Anregungsphotonenenergie kann somit individuell auf das jeweilige Experiment zugeschnitten werden. Der nichtlineare Prozess hat einen Wirkungsgrad von unter 25 %, es verbleiben aber typischerweise zwischen 10 μ J und 150 μ J Impulsenergie. Durch die höhere Effizienz

des Verstärkungsprozesses im Spitzenleistungsbereich des Pumpimpulses wird die Impulsdauer der Ausgangsimpulse auf etwa 80 fs verringert.

Der so aufbereitete Anregungsstrahl passiert daraufhin einen elektromechanischen Verschlussmechanismus, der ein Blockieren des Strahls ermöglicht, und wird schließlich auf die Probe fokussiert. Im Folgenden wird bei der Diskussion der experimentellen Ergebnisse die Anregungsdichte stets als Flächendichte in Photonen pro cm^2 und Impuls angegeben. Dabei wird implizit angenommen, dass durch die Ultrakurzzeitimpulse sämtliche Photonen des Impulses quasi-instantan auf der Probe auftreffen. Durch die Normierung auf einen Impuls entfallen technische Details wie Repetitionsrate und Impulsdauer.

2.1.3 Abfrage

Um die Absorption der Probe zu bestimmen, wird der am Strahlteiler abgespaltene Teil des Pumpasers verwendet. Zunächst wird er über die mechanische Verzögerungsstrecke geleitet. Zwei Spiegel mit Piezoaktuatoren hinter der Verzögerungsstrecke erhalten über zwei positionssensitive Detektoren Steuerungsinformationen, die ein Korrigieren von minimalen Abweichungen der Position und Rotation des Strahls ermöglichen. Das System ist unter der Bezeichnung „BeamLock 4D“⁷ kommerziell erhältlich. Die Abweichungen entstehen hauptsächlich durch die nicht perfekt senkrecht auf den Verzögerungsschlitten ausgerichtete Strahlführung, aber auch durch eine minimale Krümmung der Schienenführung, wie sie durch Fertigungstoleranzen oder eine Biegung des Labortisches entstehen können. Bei guter Vorjustage ist mit bloßem Auge keine Abweichung beim Verfahren des Schlittens erkennbar, durch die auf der Probe im Fokus nur wenige $10\ \mu\text{m}$ betragenden Strahldurchmesser führen aber schon kleinste Abweichung zum Auseinanderlaufen von Anregungs- und Abfragefläche. Auch der Abfragestrahl passiert einen elektromechanischen Verschluss, bevor er auf die Probe fokussiert wird.

Der bandbreitebegrenzte Laserimpuls der Pumpquelle eignet sich aufgrund seiner geringen spektralen Breite nicht direkt zum Abfragen der Absorption und wird deshalb auf ein Saphirplättchen fokussiert, wo durch den nichtlinearen Kerr-Effekt eine Selbstphasenmodulation des Lichtes eintritt. Der nichtlineare Kerr-Effekt bewirkt, dass sich der Brechungsindex eines Mediums lokal mit der Intensität I des einfallenden Lichtes gemäß

$$n(I) = n_0 + n_2 \cdot I \quad (2.2)$$

⁷Hersteller: TEM Messtechnik GmbH, Grosser Hillen 38, D-30559 Hannover, Deutschland

ändert. Für einen positiven, ausreichend hohen Kerr-Koeffizienten n_2 findet eine Selbstfokussierung des Strahls statt, da die Fortpflanzungsgeschwindigkeit im Zentrum des typischerweise gaußförmigen Intensitätsprofils aufgrund des dort lokal erhöhten Brechungsindex verringert ist. Diese Fokussierung geschieht in völliger Analogie zu einer konvexen Linse, wo im Zentrum die optische Weglänge durch den längeren Strahlweg im Glas ebenfalls erhöht ist. Der Brechungsindexgradient bewirkt eine kontinuierliche Ablenkung der Wellenfronten, die zur Fokussierung des Strahls führt.

Das Phänomen der Selbstphasenmodulation erfordert einen Gradienten der Lichtintensität in Ausbreitungsrichtung, wie er intrinsisch bei Impulslichtquellen gegeben ist. Hierbei kommt es zu einer zeitabhängigen Zentralfrequenz des Pulses, wobei die lokale Frequenzänderung proportional zum Brechungsindexgradienten ist. Die Zentralfrequenz wird im vorderen Teil des Impulses verringert, bleibt in der Mitte unverändert und wird am Ende erhöht, was insgesamt zu einer Aufweitung des Spektrums führt. Eine detaillierte Betrachtung der Vorgänge ist im Anhang 6.2 gegeben. Das Spektrum des so modulierten Lichtes weist eine große Bandbreite auf,

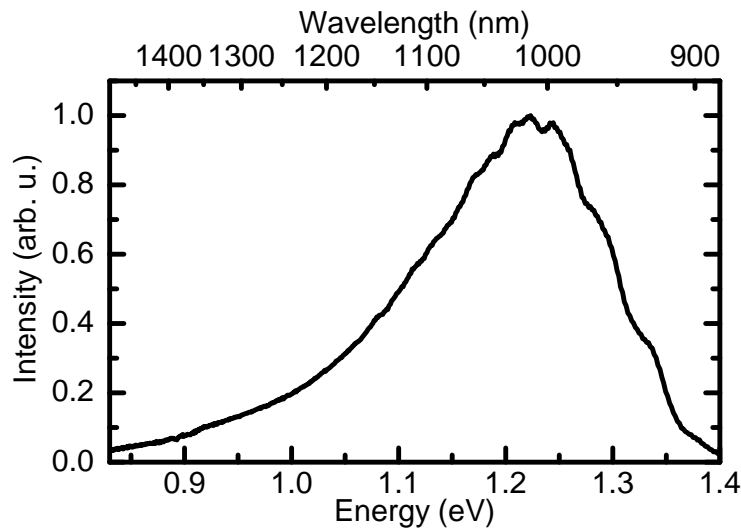


Abbildung 2.2: *Spektrum des Weißlicht-Superkontinuums im Bereich um 1,2 eV. Die zu höheren Energien stark abfallende Flanke ist durch einen Kantenfilter RG1000 (Schott Filtergläser) bedingt, der benutzt wurde, um die hochintensive Fundamentale des Pumplasers bei 1,55 eV zu eliminieren. Mit geeigneten Kombinationen von optischen Filtern, die eine dem Weißlicht entgegenlaufende Transmissionsflanke aufweisen, lässt sich für fast jeden Bereich eine ausreichend flache Intensitätsverteilung erreichen.*

die vom ultravioletten Bereich von 3,5 eV an bis in den mittleren Infrarotbereich bis zu 0,7 eV reicht und die Bezeichnung „Weißlicht“ geprägt hat.

In Abb. 2.2 ist ein typisches Spektrum des Superkontinuums abgebildet. Die Intensität bricht ab 1,2 eV stark ein, da ein Kantenfilter benutzt wurde, um die Fundamente des Pumpasers zu blockieren. Die Intensität des Weißlichts fällt von der erzeugenden Photonenenergie aus sehr stark ab, so dass optimalerweise eine Filterung mit flachen Kantenfiltern durchgeführt wird, die die Flankensteilheit auf Kosten der Gesamtintensität verringern. Durch die große Bandbreite des Abfragelichtes wird die Impulsdauer in jeder Optik auf dem Weg zur Probe, den erzeugenden Saphirkristall eingeschlossen, vergrößert. Hierbei werden die einzelnen spektralen Komponenten des Impulses aufgrund der verschiedenen Laufzeiten in Filtergläsern, Wellenplatten und Linsen zeitlich separiert. Im Hinblick auf das Anrege-Abfrage-Experiment bedeutet dies, dass stets eine von der Abfragephotonenenergie abhängige Zeitverzögerung vorliegt. Zur Kompensation dieses energieabhängigen Zeitnullpunktes kann experimentell eine Kompensation der Laufzeitdifferenzen vorgenommen werden, wie es mit einem Pulseshaper⁸ möglich ist.

Alternativ kann in einem zusätzlichen Messdurchlauf mit einem geeigneten Material eine Vermessung der spektralen Verzögerungsfunktion durch zeitliche Korrelation von Anregungs- und Abfrageimpuls mittels Multiphotonenabsorption durchgeführt werden. Anhand des Transmissionssignals lässt sich dabei eine temporäre Erhöhung der Absorption feststellen. In Abb. 2.3 ist die differentielle Absorption eines Galliumphosphidssubstrats in Falschfarbendarstellung als Funktion der Abfragephotonenenergie und der Zeit aufgetragen. Deutlich ist die Spur erhöhter Absorption zu erkennen, die den energieabhängigen Zeitnullpunkt anzeigt, was allgemein als Chirp⁹ bezeichnet wird. Die Photonenenergie des Anregungsimpulses (1,239 eV, 1000 nm) ist durch das rote Dreieck markiert. Das blaue Dreieck befindet sich an der Photonenenergie, die zusammen mit der Anregungsphotonenenergie gerade die Bandlücke des Substrats ergibt. Unterhalb dieser Energie verblasst die Spur schnell, da keine Zweiphotonenabsorption mehr stattfinden kann. Die verbleibenden Prozesse höherer Ordnung sind deutlich unwahrscheinlicher und haben deshalb geringeren Einfluss auf die Absorption.

⁸engl. Impulsformer, ermöglicht phasensensitive Kontrolle eines Laserimpulses durch selektive Verzögerung und optionale Abschwächung einzelner spektraler Komponenten

⁹engl. Chirp: wörtlich „Zwitschern“. Als Chirp bezeichnet man eine von der zeitlichen Position im Impuls abhängige Zentralfrequenz. Das Wort hat sich in Anlehnung an das tonleiterartige Geräusch, dass sich ergäbe, würde man das elektrische Feld als akustische Welle interpretieren, durchgesetzt.

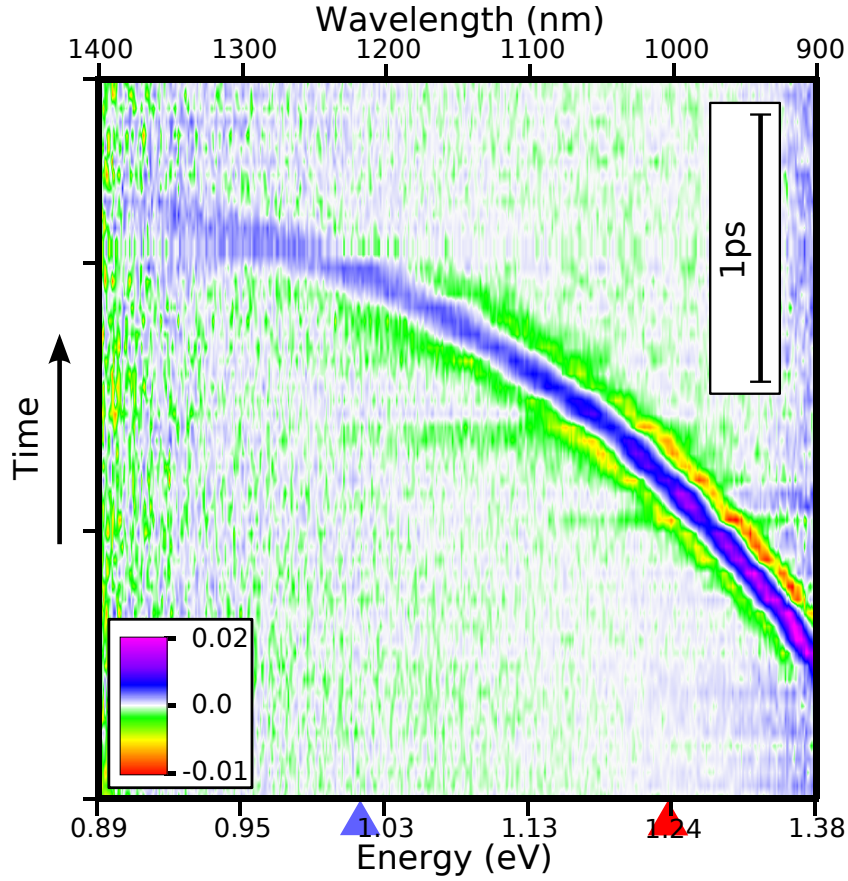


Abbildung 2.3: Korrelation des Weißlichtimpulses mit dem bei 1,239 eV (roter Pfeil) zentrierten Anregungsimpuls anhand der Multiphotonenabsorption in einem Galliumphosphidsubstrat. Sämtliche hierbei beteiligten Photonenenergien liegen unterhalb der Bandlücke des Substrats, womit nur über die nichtlineare Mehrphotonenabsorption eine Anregung stattfinden kann. Bei Koinzidenz von Anregungsimpuls und passender energetischer Komponente des Weißlichts wird durch diese Nichtlinearität eine Erhöhung der Absorption induziert. Die blaue Spur markiert somit den energieabhängigen Zeitnullpunkt des Weißlichtimpulses und erlaubt für die in der Folge durchgeführten Experimente eine entsprechende energetisch selektive Korrektur des Zeitnullpunkts. Der blaue Pfeil markiert die Energie, von der aus abwärts die Energiesumme von Anregung und Weißlicht nicht mehr über die Bandlücke des Substrates hinausreicht.

2.1.4 Spektrometer

Die Detektion des transmittierten Abfragelichts erfolgt in einem 50 cm-Gitterspektrometer, Modell Acton 500i¹⁰. Das Spektrometer enthält drei Gitter mit 801/mm, 3001/mm und 9001/mm, die verschiedene Blazewinkel im nahen Infrarot aufweisen. Der Detektor besteht aus einer (GaIn)As-Photodiodenzeile mit 512 Pixeln von je 50 μm Breite mit einem Dynamikbereich von 16 bit. Die Photodioden erreichen im Bereich von 900 nm bis 1650 nm eine hohe Sensitivität. Für das transiente Absorptionsexperiment wurde ausschließlich das Gitter mit 801/mm benutzt, welches mit der verwendeten Geometrie eine Auflösung von etwa 1 nm bei einem spektralen Bereich von ungefähr 500 nm bietet.

2.1.5 Technische Umsetzung der Absorptionsmessung

Die Absorption in der Probe wird technisch durch zwei Messvorgänge bestimmt. Das lineare Absorptionsspektrum der Probe wird gewonnen, indem bei freigegebenem Abfragestrahl die Intensitäten des Weißlichtes direkt (I_{wl}) und nach Transmission durch die im Brewsterwinkel montierte Probe (T_{probe}) mittels des Spektrometers energieaufgelöst aufgenommen werden und gemäß

$$\alpha L(E) = \ln \left(\frac{I_{wl}(E) - T_{noise}(E)}{T_{probe}(E) - T_{noise}(E)} \right) \quad (2.3)$$

zum Absorptionskoeffizienten verrechnet werden. Durch das Einstellen des Brewsterwinkels wird bei p-polarisiertem Einfall des Abfragestrahls die Reflexion an den Grenzflächen der Probe minimiert. Um die Einflüsse von Detektorrauschen und Hintergrundlicht im Labor zu eliminieren, werden die Spektren jeweils um ein entsprechendes Referenzspektrum T_{noise} korrigiert, bei dem sowohl der Anregungs- als auch der Abfragestrahl blockiert sind. Die differentiellen Spektren werden in analoger Weise aufgenommen, mit dem Unterschied, dass die Probe für den Messvorgang nicht aus dem Strahlengang entfernt werden muss. Stattdessen werden zwei Transmissionsspektren $T_{probe}(E)$ und $T_{pumpprobe}(E)$ aufgenommen, wobei beim letzteren auch der Anregungsstrahl durch den Verschluss freigegeben wird und die Probe somit mit der durch die Verschiebestrecke eingestellten Verzögerung relativ zum Abfragezeitpunkt angeregt wird. Die hiermit gemäß

$$\Delta\alpha L(E) = \ln \left(\frac{T_{pumpprobe}(E) - T_{pump}(E)}{T_{probe}(E) - T_{noise}(E)} \right) \quad (2.4)$$

¹⁰Hersteller: Roper-Scientific

ermittelte differentielle Absorption wird in diesem Fall mit den Referenzspektren T_{pump} und T_{noise} korrigiert. Das bei geöffnetem Anregungsstrahl aufgenommene Spektrum T_{pump} enthält neben dem Hintergrundlicht noch das unerwünschte Streulicht des Anregungsstrahls und die in der Probe hervorgerufene Lumineszenz, die die Absorption an der entsprechenden Energie fälschlicherweise verringern würden.

Um beide Einflüsse schon im Vorfeld zu minimieren, werden Anrege- und Abfragestrahl gekreuzt linear zueinander polarisiert. Der Abfragestrahl wird nach dem Passieren der Probe durch einen in gleicher Achse ausgerichteten Analysator geleitet, der den von der Probe gestreuten Anteil des Anregelichts unterdrückt, welcher durch polarisationserhaltende Streuung entsteht. Die obige Betrachtung gilt nur für den Fall, dass Reflexionsverluste und anregungsinduzierte Änderungen der Reflexion vernachlässigbar sind. In einem erweiterten Messaufbau, der die differentielle Absorption unter Berücksichtigung auch dieser Größen ermittelt, wurde für beide in dieser Arbeit untersuchten Materialklassen exemplarisch verifiziert, dass diese Annahme gerechtfertigt ist. Im Anhang 6.3 werden die Änderungen für den experimentellen Aufbau besprochen und eine Herleitung der Beziehung für Gleichung 2.4 gegeben.

Zur Optimierung des Signal-Rausch-Verhältnisses und zur Verringerung der im Weißlicht als letztes Glied einer Kette nichtlinearer Effekte am stärksten auftretenden Schwankungen, werden typischerweise 100 bis 1000 Impulse des Lasers integriert. Die Photodiodenzeile erlaubt Integrationszeiten bis zu minimal 1 ms, so dass durch eine Synchronisation mit dem Lasersystem auch einzelne Laserimpulse getrennt aufgenommen werden können. Dadurch ergibt sich die Möglichkeit einer Nachbearbeitung der Messdaten, bevor die Größe $\Delta\alpha L$ errechnet wird. Durch den in hohem Maße nichtlinearen Prozess der Weißlichterzeugung kommt es im Abfrageimpuls sporadisch zu starken spektralen Modulationen, die die Signalstärke der Messgröße zum Teil vielfach übersteigen. Werden solche Spektren in den Mittelungsprozess miteinbezogen, so erhält man auch in der differentiellen Absorption verfälschende Modulationen. Diese sind selbst bei der Mittelung über sehr viele Spektren nur in dem Maße reduzierbar, wie es die mittlere Häufigkeit des Auftretens eines verfälschten Spektrums erlaubt.

Um diese Problematik zu entschärfen, wurde eine automatisierte Nachbehandlung der Rohdaten entwickelt, die in das eigens für das Experiment erstellte Programm eingebunden wurde. Dem Algorithmus stehen nach der Durchführung eines Experiments mit N Mittelungsvorgängen und nach der Verrechnung der Weißlichtspektren mit den zugehörigen Hintergrundspektren für jeden Zeitschritt N Sätze von Spektren zur Verfügung, die jeweils ein Weißlichttransmissionsspektrum mit und ohne Anregung der Probe enthalten. Anstatt die Spektren eines Paares

nur untereinander zu verrechnen, um die differentielle Absorption zu gewinnen, werden alle gültigen Kombinationen von $\Delta\alpha L$ -Spektren der Paare untereinander errechnet. Dabei entstehen insgesamt N^2 $\Delta\alpha L$ -Spektren, die im Vergleich zu den N nur innerhalb eines Paares errechneten $\Delta\alpha L$ -Spektren einen potentiell geringeren relativen Anteil an unbrauchbaren $\Delta\alpha L$ -Spektren aufweisen. Dies wird an folgendem Beispiel klar: Bei einem sehr hohen Anteil an unbrauchbaren Weißlichtspektren findet sich unter Umständen unter den N der $\Delta\alpha L$ -Spektren, die durch die getrennte Verrechnung der Paare entstehen, kein einziges unverfälschtes. Die Wahrscheinlichkeit, bei der paarübergreifenden Verrechnung wenigstens eine geringe Menge an Kombinationen aus unverfälschten Ausgangsspektren zu wählen, ist deutlich höher.

Entscheidend für die Brauchbarkeit des Algorithmus ist der Filter, mit dem über das Akzeptieren oder das Verwerfen der auf diese Weise erzeugten $\Delta\alpha L$ -Spektren entschieden wird. Zwar verändert der Filter nicht direkt die Messdaten, er kann aber trotzdem, im Fall einer unglücklichen Wahl der Parameter, durch ein selektives Entfernen einzelner Spektren das Ergebnis beeinflussen. Aus diesem Grund wurde sowohl in der Konzipierung als auch durch ausgiebige Tests äußerste Sorgfalt darauf verwandt, eine diesbezügliche Tendenz zu unterbinden. Dies schloss insbesondere für alle in dieser Arbeit diskutierten Ergebnisse den Vergleich von gefilterten und ungefilterten Daten ein, wobei in keinem Fall eine verfälschende Abweichung festgestellt wurde.

Als Auswahlkriterium des Filters wird die Modulationsstärke des differentiellen Absorptionssignals möglichst weit unterhalb der Bandlücke des jeweiligen Materials gewählt. Das Signal weist in diesem Bereich in der Regel, i.e., bei allen für diese Arbeit durchgeführten Messungen, keinerlei Resonanzen oder sonstige schmalbandige Merkmale auf. Die von einem verfälschten Weißlichtspektrum erzeugten spektralen Modulationen heben sich deutlich vom Rauschuntergrund ab und werden über eine Fourieranalyse bezüglich ihrer Wellenlänge und Stärke untersucht. Beim Überschreiten von passend gewählten Schwellen wird das Spektrum verworfen, ansonsten in den weiteren Mittelungsprozess einbezogen. Diese Kombination aus problemspezifischen Filter und Ausnutzen aller kombinatorischen Möglichkeiten ermöglicht es, das Signal-Rausch-Verhältnis bzw. die Messzeit drastisch zu verringern, so dass für eine vollständige Messung im Schnitt nur etwa 10 min benötigt werden.

2.2 Referenzsysteme (GaIn)As, (GaIn)(NAs)

Zur Veranschaulichung der fundamentalen Eigenschaften der verwendeten Methode und ihrer Stärken und Schwächen, und um mit der Auswertung der experimentellen Daten vertraut zu werden, seien zunächst Experimente an den zwei wohlbekannten und gut charakterisierten Referenzsystemen (GaIn)As und (GaIn)(NAs) vorgestellt. Die seit geraumer Zeit gebräuchliche Halbleiterlegierung (GaIn)As ist in weiten Konzentrationsbereichen mit hoher Qualität herstellbar. Sie erschließt auf dem Gebiet der Elektronik den Hochfrequenzbereich, findet aber vor allem in der Halbleiteroptik Verwendung. Insbesondere die Eignung als Lasermedium für den nahinfraroten Spektralbereich in Kombination mit der durch die Komposition gut kontrollierbaren Bandlücke hat bereits eine Vielzahl von Anwendungen ermöglicht, beispielsweise als Pumpaserdiode. Durch Dotierung des Materials mit bis zu einigen Prozent Stickstoff kann eine drastische Verringerung der Bandlücke erreicht werden, die durch einen komplexen Bandformierungsprozess zustande kommt [Kla01, Qiu05, Sha99, Vur03]. Das quaternäre Material (GaIn)(NAs) kann somit im Wellenlängenbereich um 1300 nm und um 1550 nm herum eingesetzt werden, in dem Laserdioden für Telekommunikation eine große wirtschaftliche Relevanz besitzen, da in diesem Bereich ein Dispersions- bzw. Absorptionsminimum der gebräuchlichen und bereits zu Millionen Kilometern verlegten Glasfasern liegt. Durch die deutlich besseren thermischen und prozesstechnischen Eigenschaften des Substratmaterials ist es dabei, seinen Vorgänger auf Basis von Indiumphosphid weitgehend zu ersetzen.

2.2.1 Probenstrukturen

Sowohl für (GaIn)As als auch für (GaIn)(NAs) standen jeweils Multiquantenfilmstrukturen zur Verfügung, die durch Molekularstrahlepitaxie (MBE¹¹) und metallorganische Gasphasenepitaxie (MOVPE¹²) hergestellt wurden.

Im Fall der per MBE hergestellten Probe auf Basis von (GaIn)As, die im Weiteren unter der Bezeichnung „*mod24*“ geführt wird, handelt es sich um einen Stapel aus 21 hoch verspannten Quantenfilmen, die jeweils eine Dicke von 9,8 nm aufweisen. Die Quantenfilme sind durch eine Schicht aus GaAs voneinander separiert, um das Confinement¹³ zu gewährleisten. Mittels Röntgenbeugungsspektroskopie wurden

¹¹engl.: **M**olecular **B**eam **E**pitaxy

¹²engl.: **M**etal-**O**rganic **V**apour-**P**hase **E**pitaxy

¹³zu Deutsch etwa „Einschluss“. In diesem Zusammenhang ist der Einschluss der elektronischen Wellenfunktionen auf ein beschränktes Raumgebiet gemeint. Das Wort wird mangels einer passenden Entsprechung im Deutschen nicht übersetzt.

die Schichtdicken verifiziert und ein Indiumgehalt von 19,8% in den Quantenfilmen ermittelt. Sämtliche in dieser Arbeit zu der Probe diskutierten Ergebnisse sind in Ref. [Lan07a] veröffentlicht worden. Die Probe wurde von Galina Khitrova¹⁴ und Hyatt M. Gibbs¹⁴ zur Verfügung gestellt.

Die per MOVPE hergestellte Probe „23454“ enthält neun Quantenfilme aus $(\text{Ga}_{0,67}\text{In}_{0,33})\text{As}$. Der hohe Indiumgehalt bewirkt durch die von unterschiedlichen Gitterkonstanten von GaAs und InAs eine hohe Verspannung im Material. Die Quantenfilme sind in Confinementschichten aus aufeinanderfolgend 10 nm GaAs, 104 nm $\text{Ga}(\text{P}_{0,03}\text{As}_{0,97})$ und 10 nm GaAs eingebettet. Zwischen Quantenfilmen und semiisolierendem GaAs-Substrat befinden sich in dieser Reihenfolge Schichten aus 75 nm $(\text{Al}_{0,85}\text{Ga}_{0,15})\text{As}$, 20 nm GaAs und 200 nm $(\text{Al}_{0,85}\text{Ga}_{0,15})\text{As}$. Wie bei der Diskussion der Probe noch besprochen wird, dienen diese Schichten als chemisch selektive Stoppschicht für einen nasschemischen Ätzvorgang, bei dem das Substrat der Probe entfernt werden kann. Die Probe wurde am WZMW¹⁵ hergestellt.

Die Probe aus der Klasse der verdünnten Nitride („12934“) schließlich ist eine Teststruktur, die speziell für einen Eignungstest bezüglich eines oberflächene-mittierenden Lasers mit vertikalem Resonator (VCSEL¹⁶) hergestellt wurde. Sie besteht, wie für eine Laserstruktur üblich, aus nur drei Quantenfilmen aus $(\text{Ga}_{0,74}\text{In}_{0,26})(\text{N}_{0,018}\text{As}_{0,982})$, die durch 24,6 nm dicke GaAs-Barrieren getrennt sind. Der oberste Quantenfilm ist zur Vermeidung von Oberflächenrekombination mit einem Stapel aus 155 nm GaAs, einer sechsfachen Struktur aus alternierenden, 2,5 nm dicken AlAs- und GaAs-Schichten und schließlich 10 nm GaAs abgedeckt. Unter den Quantenfilmen befinden sich nach 175 nm GaAs eine identische alternierende GaAs/AlAs-Struktur und eine 300 nm dicke GaAs-Schicht, bevor das Substrat folgt. Die direkt auf das Substrat aufgebrachte Schicht aus GaAs ermöglicht das Ausheilen von Defekten, die das typischerweise weniger hochwertige Substrat in die Struktur einbringen würde. Nach dem Wachstum wurde ein zehnminütiger Tempervorgang bei 730°C durchgeführt. Die Probe wurde von der Infineon Technologies AG¹⁷ bereitgestellt.

¹⁴College of Optical Sciences, The University of Arizona, Tucson, USA

¹⁵Dr. Bernadette Kunert, Dr. habil. Wolfgang Stolz, Wissenschaftliches Zentrum für Materialwissenschaften, Philipps-Universität Marburg

¹⁶engl.: Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser

¹⁷Lutz Geelhaar, Infineon Technologies AG, Corporate Research Technology Lab, München

2.2.2 Dynamik der Absorption von (GaIn)As

Anhand des linearen Absorptionsspektrums in Abb. 2.4 lassen sich die fundamentalen Resonanzen der Struktur identifizieren und mithilfe der Theorie einzelnen elektronischen Übergängen zuordnen. Der Übergang aus dem ersten Schwerlochband in das erste Leitungsband, abgekürzt mit „hh1-e1“, bestimmt die Bandlücke bei 1,209 eV (1025 nm). Der Übergang aus dem zweiten Schwerlochband ins zweite Leitungsband („hh2-e2“) liegt bei 1,284 eV (965 nm), gefolgt von einem dritten Übergang bei 1,339 eV (925 nm).

Die stufenförmige Ausprägung der Absorption ist ein fundamentales Merkmal einer zweidimensionalen Halbleiterstruktur. Die diesem Modell sehr gut entsprechende Form lässt auf eine hohe Probenqualität bezüglich der Ebenheit der Grenzflächen und der Homogenität der Legierung schließen. Eine exzitonische Resonanz ist nur am Grundzustand vorhanden, bei höheren Energien sind keine Überhöhungen

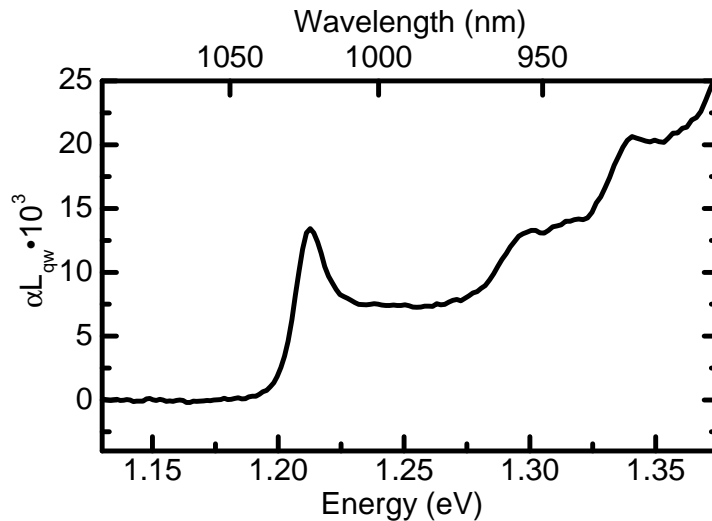


Abbildung 2.4: Lineares Absorptionsspektrum der Probe mod24 bei Raumtemperatur. Der Wert der Absorption ist auf einen einzelnen Quantenfilm normiert. Aufgrund des zweidimensionalen Charakters des Systems findet keine Normierung auf die Dicke der Struktur statt. Die fundamentale Bandlücke bei 1,209 eV (1025 nm) entspricht dem Übergang vom ersten Schwerlochband ins erste Leitungsband („hh1-e1“) und zeigt eine stark ausgeprägte exzitonische Resonanz. Es folgt der Übergang vom zweiten Schwerlochband ins zweite Leitungsband bei 1,284 eV („hh2-e2“, 965 nm) und ein weiterer Übergang bei 1,339 eV (925 nm). Die stufenförmige Ausprägung der Absorption ist typisch für ein Quantenfilmsystem.

erkennbar. Aufgrund der Messmethode, bei der der Abfragestrahl senkrecht zu den Quantenfilmen orientiert ist, ist es nicht sinnvoll, die Absorption wie sonst üblich in cm^{-1} anzugeben [Blo00]. Stattdessen wird die Größe αL so, wie sie im Exponent des Bouguer-Lambert'schen Gesetz auftritt, verwendet, und lediglich auf den Wert für einen einzelnen Quantenfilm normiert. Eine für zweidimensionale Systeme angepasste Notation wäre ein Schwächungskoeffizient ϵ , der die Intensitäten des einfallenden und transmittierten Lichts gemäß $I_{\text{transmittiert}} = \epsilon \cdot I_{\text{einfallend}}$ verbindet oder aber - hiervon verschieden - den exponentiellen Faktor gemäß $\epsilon = \alpha L$ abkürzt. Aus Konsistenzgründen mit bestehender Literatur wird jedoch auf die Einführung einer solchen Notation verzichtet.

Die Anregung der Probe mit einem Impuls von 80fs Dauer bei 1,264 eV (980 nm) und einer Photonendichte von $2,4 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ induziert eine deutliche Änderung der Absorption, wie in der Falschfarbenauftragung in Abb. 2.5 dargestellt. Sowohl der Grundzustand als auch die beiden angeregten Zustände werden bevölkert, was sich in einer Schwächung der Absorption bemerkbar macht. Die durch die Besetzung bedingte Erhöhung der Loch- und Elektronendichte im Valenz- bzw. Leitungsband verringert die Gesamtwahrscheinlichkeit für einen weiteren Übergang eines Elektrons aus dem Valenz- ins Leitungsband. Die Wahrscheinlichkeit hierfür ist zum einen proportional zum Übergangsmatrixelement des Anfangs- und des Endzustandes, aber auch proportional zum durch die Besetzung verringerten Phasenraumfüllfaktor $(1 - f_k^e - f_k^h)$, welcher die impulsabhängigen Loch- und Elektronendichten f_k^e und f_k^h enthält.

Das Abklingen des Signals verläuft prinzipiell exponentiell, ist aber insbesondere für den Grundzustand durch Nachfüllen von Ladungsträgern aus energetisch höher gelegenen Zuständen verlangsamt. Die Ausläufer der Signale zu großen Zeiten lassen jedoch eine von diesem Effekt bereinigte Auswertung der Abklingzeiten zu. Die somit ermittelten Zeitkonstanten betragen $\tau_{hh1-e1} = 550 \text{ ps} \pm 50 \text{ ps}$ für den Übergang hh1-e1, $\tau_{hh2-e2} = 250 \text{ ps} \pm 20 \text{ ps}$ für den Übergang hh2-e2 und $\tau_{2nd} = 210 \text{ ps} \pm 20 \text{ ps}$ für den höheren Übergang. Hierbei handelt es sich um den Abfall des differentiellen Signals, welches sich im Allgemeinen nicht direkt proportional zur Elektronendichte im Leitungsband verhält.

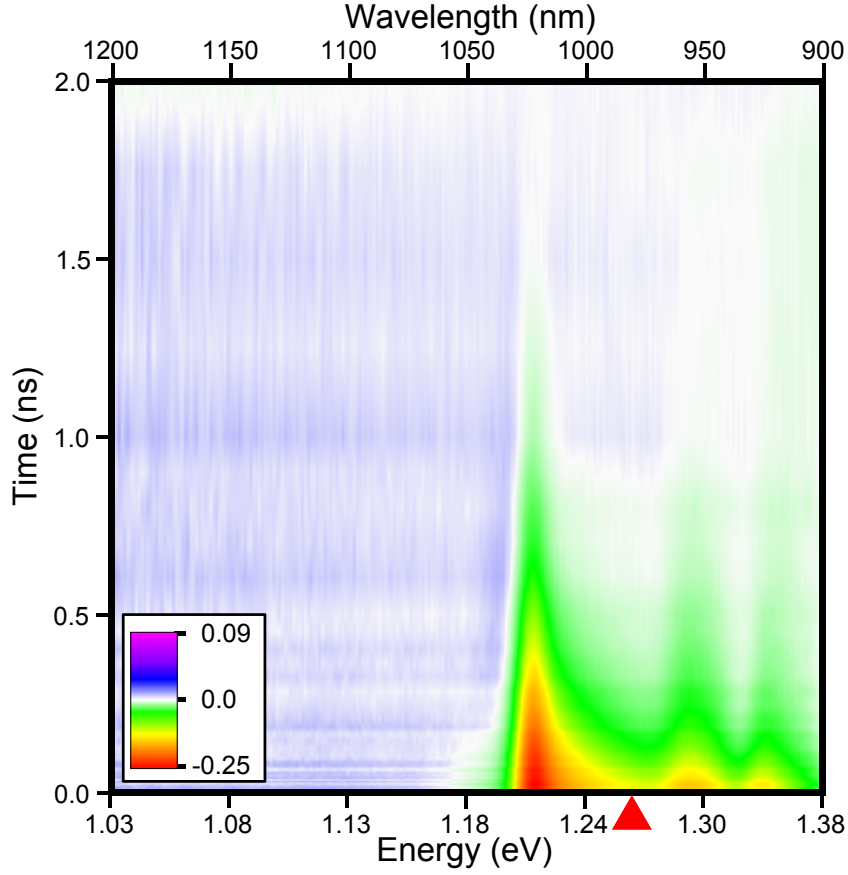


Abbildung 2.5: Differenzielle Absorptionsspektren der Probe *mod24* bei Raumtemperatur als Funktion der Zeit in Falschfarbenkodierung. Die Probe wurde bei 1,264 eV (durch rotes Dreieck angezeigt) mit einer Photonendichte von $2,4 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ angeregt. Die dadurch induzierte Absorptionsänderung ist über einen Zeitraum von 2 ns bis zur vollständigen Rückbildung des Gleichgewichtszustandes gezeigt. Die drei im Kontext zu Abb. 2.4 diskutierten Zustände sind auch hier deutlich erkennbar. Die exponentielle Abfallcharakteristik des Signals erlaubt die Bestimmung einer 1/e-Zeitkonstanten von $550 \text{ ps} \pm 50 \text{ ps}$ für den fundamentalen Übergang *hh1-e1*, $250 \text{ ps} \pm 20 \text{ ps}$ für den Übergang *hh2-e2* und $210 \text{ ps} \pm 20 \text{ ps}$ für den höheren Übergang. Unterhalb von 1,2 eV ist über den gesamten Zeitraum keine Änderung der Absorption beobachtbar.

2.2.3 Verstärkung in (GaIn)As

Um eine Aussage über die Absorption des Systems nach der Anregung zu erhalten, wird zur differentiellen Absorption die lineare addiert. Ist die Summe beider an einer spektralen Position kleiner als Null, so wird die Intensität eines transmittierten Strahls vergrößert - es liegt Verstärkung vor.

In Abb. 2.6 sind spektrale Schnitte der Absorption aus obiger Messung zu verschiedenen Zeiten (gestrichelte Kurven) zusammen mit den theoretischen Ergebnissen einer mikroskopischen Rechnung (durchgezogene Kurven) gezeigt. Kurz nach der Anregung (5 ps) liegt das Maximum der Verstärkung vor. Im Bereich von 1,264 eV (980 nm) bis 1,174 eV (1055 nm) nimmt die Absorption negative Werte an, die bis zu $\alpha L = -2 \cdot 10^{-3}$ pro Quantenfilm bei 1,209 eV (1025 nm) betragen. Bedingt durch die hohe Ladungsträgerdichte findet eine Bandkantenrenormierung statt, die die Bandlücke des Materials dynamisch verringert und Verstärkung auch unter der Gleichgewichtsbandkante ermöglicht. Über einen Zeitraum von 350 ps bildet sich die Absorption bis zum Erreichen des Transparenzpunktes teilweise zurück. Hierbei ist ein Verschieben des Maximums der Verstärkung von anfangs 1,209 eV hin zu 1,191 eV (1040 nm) zu beobachten. Der Effekt, der gegen die Bandkantenrenormierung konkurriert, geht auf das Auffüllen der elektronischen Zustände zurück, deren Zustandsdichte an der Bandkante stark ansteigt. Die Besetzung folgt im Wesentlichen dem Produkt aus dieser ansteigenden kombinierten Zustandsdichte und der Fermiverteilung. Infolgedessen sind bei von der Bandkante aus steigendem Fermi-niveau zunächst stets deutliche mehr besetzte Zustände in der Nähe (d.h. unterhalb) des Fermi-niveaus vorhanden, so dass das Maximum der Besetzung diesem in erster Näherung folgt und sich zu höheren Energien mit verschiebt. Die phänomenologische Abklingzeit des Verstärkungsprozesses bis zum Erreichen des Transparenzpunktes beträgt etwa $\tau_{\text{Verstärkung}} = 250 \text{ ps} \pm 25 \text{ ps}$. Nach 800 ps ist die Besetzung weitgehend abgebaut und der Gleichgewichtszustand fast wieder erreicht.

Für ein umfassenderes Verständnis der im Detail ablaufenden Streuprozesse und der Entwicklung der Ladungsträgerdichte ist eine theoretische Betrachtung der elektronischen Vorgänge unerlässlich. Die entsprechenden Spektren in Abb. 2.6 (durchgezogene Kurven) wurden im Rahmen der Doktorarbeit von Christoph Schlichenmaier¹⁸ erarbeitet. Die mikroskopische Theorie basiert auf der Lösung der Bewegungsgleichungen, die über die Halbleiter-Bloch- [Lin88c, Hau04] und die Halbleiter-Lumineszenz-Gleichungen [Kir99b, Gir97] formuliert sind und eine parameterfreie Beschreibung der Absorption leisten. Streuung und Augereffekte

¹⁸Dr. Christoph Schlichenmaier, ehemals AG Theoretische Halbleiterphysik, Philipps-Universität Marburg

werden durch quantenkinetische Boltzmann-Streuintegrale auf dem Niveau der zweiten Born-Markov-Näherung beschrieben. Der das System beschreibende Hamiltonoperator umfasst die Wechselwirkung von Licht und Materie, Coulombwechselwirkung des Elektronensystems sowie die Ankopplung des Elektronensystems an das Phononensystem. Hierbei beschränkt sich die Beschreibung auf longitudinale optische Phononen. Die Matrixelemente des Hamiltonoperators werden über eine auf das vorliegende Materialsystem zugeschnittene Bandstrukturberechnung auf Basis einer $8 \times 8 \cdot \vec{k} \cdot \vec{p}$ -Theorie ermittelt. Die Theorie wurde bereits auf eine Vielzahl von verschiedensten Materialsystemen angewendet und ist in der Lage, eine quantitative Aussage über die optischen Eigenschaften zu treffen [Thr05, Cho97, Büc07].

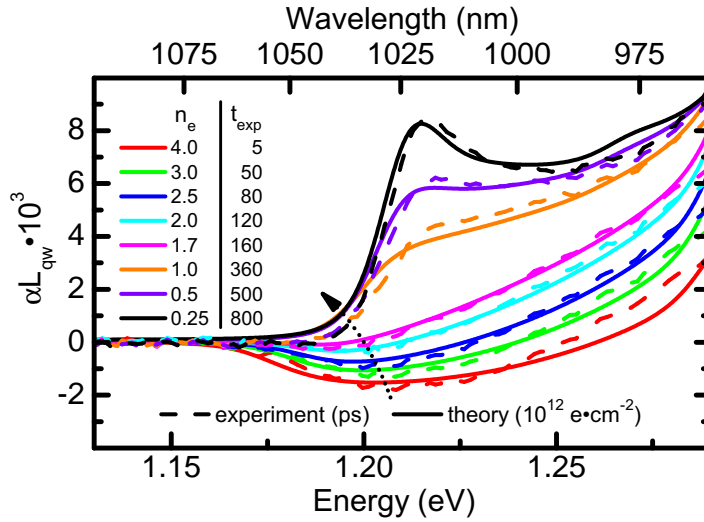


Abbildung 2.6: *Optische Verstärkung der auf (GaIn)As basierten Probe mod24. Experimentelle und theoretische Spektren sind für verschiedene Zeiten bzw. verschiedene Ladungsträgerdichten eingezeichnet. Die Zuordnung von theoretischen zu experimentellen Spektren erfolgte anhand eines Vergleichs der Kurvenformen. Kurz nach der Anregung erreicht das System die größte Verstärkung. Über den Bereich von 1,264 eV (980 nm) bis 1,174 eV (1055 nm) nimmt die Absorption negative Werte bis zu $\alpha L = -2 \cdot 10^{-3}$ pro Quantenfilm bei 1,209 eV (1025 nm) an. Die exzellente Übereinstimmung mit der Theorie zeigt, dass das Materialsystem gut verstanden ist.*

Die Kinetik des Elektronensystems lässt sich grob in zwei Zeitbereiche einteilen. In der Nichtgleichgewichtsphase unmittelbar nach der Anregung finden schnelle Streuprozesse statt, die mit einer typischen charakteristischen Zeit von 100 fs für

eine Thermalisierung des Systems sorgen. Dies bedeutet, dass sich die energetische Verteilung der Ladungsträger mit einer Fermiverteilung mit wohldefinierter Temperatur und wohldefiniertem chemischen Potential beschreiben lässt. In der Folge kühlt sich das Elektronensystem durch Emission von Phononen rasch ab, bis es die Temperatur des Kristallgitters erreicht hat. Ab diesem Zeitpunkt befindet sich das System in einem Quasigleichgewichtszustand. Die verbleibende Dynamik ist durch die Rekombination der Ladungsträger unter Emission von Licht oder durch Störstellen auf einer Zeitskala von hunderten von Pikosekunden bestimmt. Im Quasigleichgewicht ist durch die verlangsamte Dynamik der Rekombinationsprozesse eine thermische Verteilung der Elektronen stets gewährleistet. Für den konkreten Fall wird daher angenommen, dass die Elektronen ab der kleinsten betrachteten Zeit von 5 ps stets einer Fermiverteilung mit der Gittertemperatur von 300 K gehorchen. Zur Klärung wurde verifiziert, dass theoretische Spektren zu höheren Temperaturen keine bessere Übereinstimmung mit dem Experiment zeigen.

Die theoretischen Spektren auf Basis dieser Methode werden alleinig als Funktion der Ladungsträgerdichte errechnet. Die experimentellen Spektren werden, wie in Abb. 2.6 gezeigt, den theoretischen durch den Vergleich der Linienformen auf bestmögliche Übereinstimmung hin zugeordnet, so dass sich eine Verknüpfung von Zeit (Experiment) und Ladungsträgerdichte (Theorie) herstellen lässt. Dieser Zusammenhang ist in Abb. 2.7 dargestellt. Die Übereinstimmung der Spektren ist bei hohen Ladungsträgerdichten sehr gut und zeigt lediglich im unteren Dichtebereich, wo die spektrale Form hauptsächlich durch inhomogene Verbreiterung bestimmt wird, leichte Abweichungen.

Der direkte Zugang zum Dichteverlauf ermöglicht es, direkt die Zerfallszeit der Ladungsträgerdichte zu bestimmen, ohne sich auf indirekte Merkmale wie das differentielle Signal stützen zu müssen. In die ermittelte Abklingzeit von $\tau_n = 190 \text{ ps} \pm 20 \text{ ps}$ geht die gesamte Ladungsträgerdichte ein, und eine Verfälschung der Zeitkonstanten durch parasitäre Prozesse wie Umverteilung von Population zwischen verschiedenen Zuständen und Nachfüllen aus höheren Zuständen ist, wie bereits diskutiert, ausgeschlossen. Prinzipiell sind deshalb die Abklingzeiten der Ladungsträgerdichte und die des differentiellen Signals nicht vergleichbar.

An dieser Stelle fällt auf, dass eine deutliche Diskrepanz zwischen der Photondichte bei der Anregung und der ermittelten Ladungsträgerdichte besteht. Der Grund liegt in der geringen Absorption der Quantenfilme, wodurch nur ein Bruchteil des auftreffenden Lichts auch tatsächlich Elektron-Loch-Paare erzeugt. Zusätzlich kommt es durch die sehr kurze Dauer des Anregungsimpulses zu einer Blockade der Übergänge der angeregten Zustände durch das Pauliprinzip. Die erzeugten Ladungsträger verbleiben in erster Näherung während der Impulsdauer

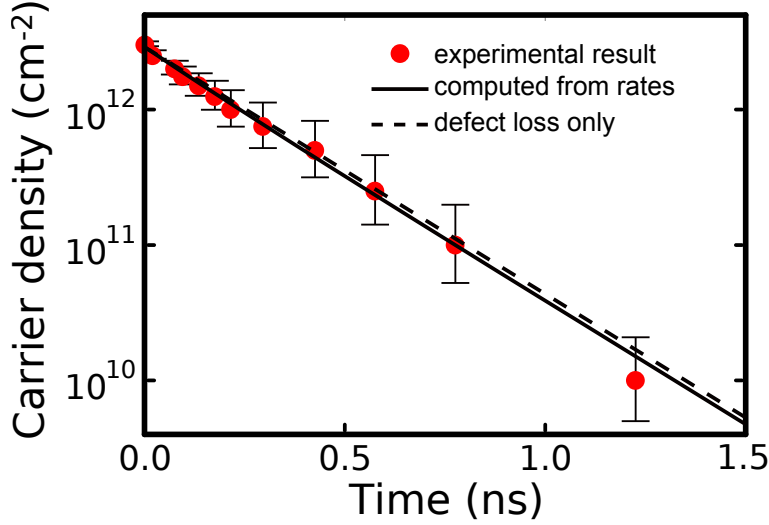


Abbildung 2.7: Zeitliche Entwicklung der Ladungsträgerdichte (Probe mod24). Die durch Kurvenformvergleich durchgeführte Zuordnung (siehe Abb. 2.6) von theoretischer Ladungsträgerdichte und experimenteller Zeit ergibt einen exponentiellen Dichteverlauf mit einer charakteristischen Zerfallszeit von $\tau_n = 190 \text{ ps} \pm 20 \text{ ps}$.

in den Zuständen, in denen sie erzeugt wurden. Damit ist für einen potentiell großen Teil des Impulses effektiv eine verringerte Absorption gegeben, da die Elektronen als Fermionen keine weitere Besetzung der Zustände erlauben.

Der Zugang zum zeitlichen Verhalten der Dichte $n(t)$ erlaubt es mit Hilfe der Theorie, die im Detail ablaufenden Rekombinationsmechanismen zu untersuchen. Die bereits über das zeitliche Dichteverhalten bestimmte Gesamtverlustrate R_{gesamt} lässt sich in ihre Bestandteile gemäß

$$R_{\text{gesamt}} = R_{\text{mono}} + R_{\text{spontan}} + R_{\text{Auger}} \quad (2.5)$$

zerlegen. Hierbei wird die spontane Emission [Han05] mit R_{spontan} und der Verlust über Augerprozesse [Had05] mit R_{Auger} bezeichnet. Die verbleibende Rate R_{mono} beinhaltet Verluste aufgrund von monomolekularen Mechanismen, die im Wesentlichen der Rekombination an tiefen Störstellen nach Shockley-Read-Hall zuzuschreiben sind. Eine simple Abschätzung ergibt, dass für den Durchmesser des angeregten Gebiets Verluste durch ambipolare Diffusion in diesem System vernachlässigbar sind.

Das Ergebnis der Zerlegung ist in Abb. 2.8 dargestellt, wo die einzelnen Raten als Funktion der Ladungsträgerdichte aufgetragen sind. Die Verlustrate über

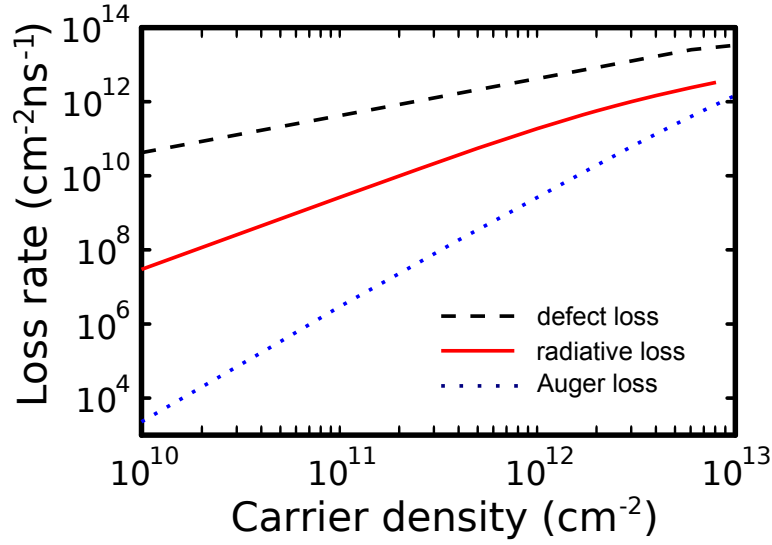


Abbildung 2.8: Aufschlüsselung des Ladungsträgerzerfalls in einzelne Unterkanäle. Mithilfe der theoretischen Betrachtung können verschiedene Mechanismen identifiziert und ihre Bedeutung bemessen werden. Der Zerfall wird durch Rekombination an Störstellen nach Shockley-Read-Hall dominiert. Strahlende und durch Auger-effekte bedingte Verluste spielen mit mehr als einer Größenordnung Abstand nur eine untergeordnete Rolle.

Störstellen setzt sich mit mindestens einer Größenordnung Abstand deutlich von strahlenden Verlusten und Augerverlusten ab und bestimmt somit die gesamte Rekombinationsdynamik. Die Störstellenrekombinationsrate folgt der Ladungsträgerdichte in sehr guter Näherung linear gemäß $R_{\text{mono}} = 4,2 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1} \cdot n_e$. Ein typischer Wert für die Ladungsträgerdichte in einem hochangeregten Halbleiter ist hierbei $n_e = 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, wie sie auch in diesem Experiment (siehe Abb. 2.7) erreicht wurde.

Die Störstellendichte N_t in der Probe kann über die Statistik nach Shockley-Read-Hall gemäß $N_t = (\sigma \tau_n v_{\text{thermisch}})^{-1}$ abgeschätzt werden. Die Lebensdauer τ_n der Ladungsträger ist über das Experiment zugänglich, und die thermische Geschwindigkeit $v_{\text{thermisch}}$ ist im klassischen Modell über die Gittertemperatur T nach $v_{\text{thermisch}} = \sqrt{3k_b T / m_e}$ gegeben. Würde man korrekterweise eine Fermiverteilung ansetzen, so würde man eine höhere mittlere Geschwindigkeit errechnen, da sämtliche Zustände, insbesondere die mit niedriger kinetischer Energie, nur einfach besetzt werden können. Die ermittelte Störstellenkonzentration würde in diesem Fall folglich noch kleiner als die im Folgenden durchgeführte Abschätzung ausfallen. Der Wirkungsquerschnitt σ muss zwischen der Bindungslänge und

dem Bohrradius des Materials liegen. Mit diesen beiden Extrema ergeben sich Störstellenkonzentrationen zwischen 10^{11} cm^{-3} und 10^{15} cm^{-3} . Der obere Wert ist durch die Art der Abschätzung als pessimistische Obergrenze anzusehen, würde aber immer noch für eine hohe Materialqualität der Probe sprechen.

2.2.4 Verstärkung in (GaIn)(NAs)

In Abb. 2.9 sind differentielle Absorptionsspektren der auf (GaIn)(NAs) basierten Laserstruktur bei einer Photonendichte von $9 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ bei 1,354 eV (915 nm) als durchgezogene Kurven aufgetragen. Es fällt auf, dass das Spektrum zu 5 ps Zeitverzögerung im hochenergetischen Ausläufer einen flacheren Verlauf aufweist als Spektren zu späteren Zeiten.

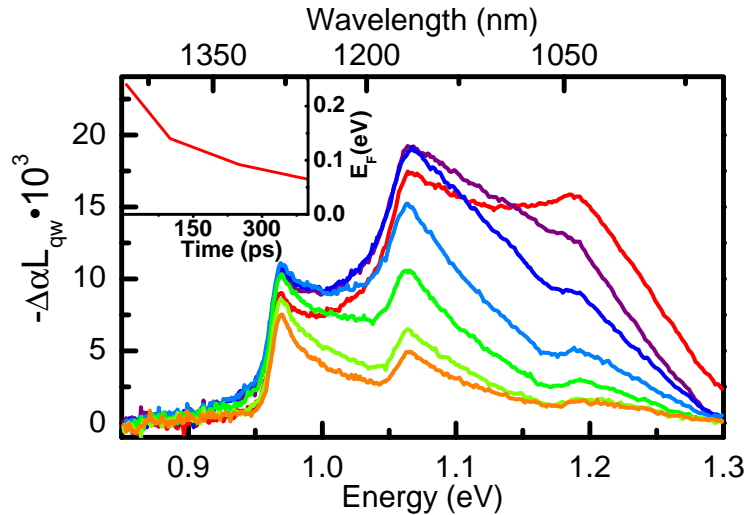


Abbildung 2.9: Abkühl- und Rekombinationsvorgang in (GaIn)(NAs) bei hoher Anregungsphotonendichte von $9 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ bei 1,354 eV (915 nm). Von oben (rot) nach unten (orange) sind differentielle Absorptionsspektren zu Verzögerungen von 5 ps, 50 ps, 100 ps, 250 ps, 400 ps, 650 ps und 850 ps aufgetragen. Die flachere Form des hochenergetischen Ausläufers bei 5 ps Verzögerung ist auf eine noch erhöhte Temperatur der Elektronenverteilung zurückzuführen, die durch die hohe Überschussenergie der Anregung zustande kommt. Über eine modifizierte Version der Kubo-Martin-Schwinger-Relation generierte Spektren dienen dem Abschätzen des Fermi-niveaus, dessen Verlauf im Einsatz oben links gezeigt ist. Die über einen weiten Zeitraum (400 ps) nahezu konstante Signalstärke am Grundzustand bei 0,97 eV begründet sich durch Nachfüllen von Elektronen aus höheren Zuständen.

Der Effekt wird besonders deutlich, wenn man die Höhen der differentiellen Signale am ersten (1,065 eV, 1163 nm) und zweiten Übergang (1,191 eV, 1040 nm) für 5 ps (rot), 50 ps (violett) und 100 ps (blau) vergleicht. Die hohe Überschussenergie der Anregungsenergie in Bezug auf den fundamentalen Übergang von fast 400 meV würde Temperaturen im Elektronensystem von über 4000 K erlauben. Tatsächlich läuft der Injektionsprozess nicht adiabatisch ab und es erfolgt bereits während des Herabstreuens eine Wechselwirkung mit dem Phononensystem, in das ein Großteil der Energie abgegeben wird. Durch das ebenso schon während der Anregung stetig ansteigende Ferminiveau verringert sich die Überschussenergie zudem kontinuierlich, so dass sie für die letzten injizierten Ladungsträger nur noch etwa 200 meV beträgt. Für diese Abschätzung wurde angenommen, dass das Ferminiveau nach der Anregung bei etwa 1,15 eV liegt.

Um den Verlauf des Ferminiveaus genauer abzuschätzen, werden vier der Spektren mit einem simplen Modell zur differentiellen Absorption verglichen (siehe Anhang 6.4). Das Ergebnis der Schätzung ist im Einsatz in Abb. 2.9 dargestellt. Das Ferminiveau weist einen nichtlinearen, asymptotischen Verlauf auf, was auf eine von der von der Ladungsträgerdichte abhängige Rekombinationsrate hinweist. Eine direkte Ableitung des Rekombinationsverhaltens ist allerdings hierdurch nicht möglich, da die nicht genau bekannte Zustandsdichte in hohem Maße mitbestimmt, wie viele Ladungsträger sich für ein festes Ferminiveau im Leitungsband aufhalten. Im Allgemeinen sind durch Absorptionsmessungen quantitative Aussagen über Ladungsträgerdichten nur über eine detaillierte theoretische Analyse zugänglich, wie sie in Abschnitt 2.2.3 durchgeführt wurde.

Die Gesamtabsorption bei einer Anregungsphotonendichte von $1,3 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ bei 1,354 eV (915 nm) ist in Abb. 2.10 dargestellt. Optische Verstärkung liegt im Bereich von 0,93 eV bis 0,98 eV vor, mit einem Spitzenwert von $\alpha L = 1,2 \cdot 10^{-3}$ pro Quantenfilm. Dieser Wert und die Verstärkungsbandbreite von 50 meV sind gut mit den für (GaIn)As in Abschnitt 2.2.3 ermittelten Werten vergleichbar. Die Lebensdauer der Verstärkung ist mit 800 ps jedoch deutlich länger und weist einen biexponentiellen Verlauf auf. Dies spricht prinzipiell für eine höhere Probenqualität und auch dafür, dass die monomolekulare Rekombination in dieser Probe weniger dominant ist, als in der im vorigen Abschnitt untersuchten (GaIn)As-Probe. Ein weiterer Grund für die langsamere Ladungsträgerrekombination ist die geringere räumliche Ausdehnung des angeregten Gebiets und die geringere Anzahl von Quantenfilmen, wobei jeweils verstärkte spontane Emission innerhalb und senkrecht zur Ebene des Quantenfilms weniger wahrscheinlich wird.

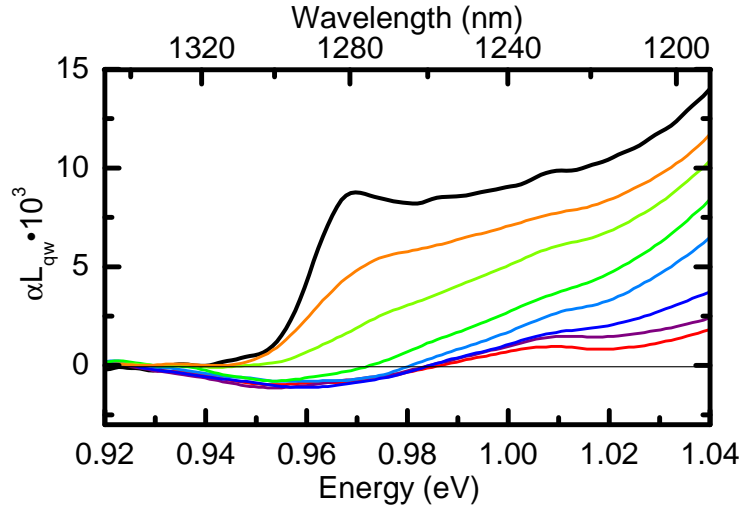


Abbildung 2.10: Verstärkung im Materialsystem (GaIn)(NAs) (Probe 12934), angeregt mit einer Photonendichte von $1,3 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ bei $1,354 \text{ eV}$ (915 nm). Der Graph zeigt Spektren zu Verzögerungszeiten von 50 ps , 100 ps , 200 ps , 400 ps , 600 ps , 950 ps und 1500 ps (von unten, rot, nach oben, orange) zusammen mit dem linearen Absorptionsspektrum in schwarz. Im Bereich von $0,93 \text{ eV}$ bis $0,98 \text{ eV}$ liegt kurz nach der Anregung negative Absorption vor. Der Spitzenwert von $\alpha L = -1,5 \cdot 10^{-3}$ und die Bandbreite von 50 meV sind hierbei vergleichbar mit den für (GaIn)As ermittelten Werten. Die Zeit bis zum Erreichen des Transparenzpunkts ist mit 800 ps jedoch deutlich größer, was für eine höhere Probenqualität spricht.

2.2.5 Ultrakurzzeitmessungen an (GaIn)As

Die bisher an den Materialsystemen (GaIn)(NAs) und (GaIn)As durchgeführten transienten Messungen konzentrieren sich auf den sich nach einigen ps einstellenden Quasigleichgewichtsfall. Die hohe Zeitauflösung des experimentellen Aufbaus, mit der beispielsweise Effekte am zeitlichen Nullpunkt messbar wären, konnte hier aus technischen Gründen nicht genutzt werden. Durch das im Vergleich zur Quantenfilmstruktur mit typischerweise $500 \mu\text{m}$ dicke Substrat ist ein großes Raumgebiet gegeben, in dem beim zeitlichen Überlapp von Anregung und Abfrage Multiphotonenabsorptionsprozesse stattfinden können. Somit findet eine Verfälschung durch ein additives Störsignal statt, welches vom Betrag durchaus wesentlich größer sein kann als das eigentliche Signal des Quantenfilms. Prinzipiell kann versucht werden, ein Substrat ohne Quantenfilme im selben Aufbau zu

vermessen und somit das Störsignal zu isolieren, um auf das Quantenfilmsignal zurückzurechnen. Im vorliegenden Fall blieb dies erfolglos, da geringste Abweichungen in der Substratqualität, der Substratdicke und damit der Strahlführung zu großen Abweichungen führten.

Die elegantere, wenn auch aufwendigere Methode zur Eliminierung des Substratsignals ist, wie bereits in der Einleitung dieses Kapitels angedeutet, das Substrat durch nasschemisches Ätzen zu entfernen. Hierfür wird die Probe mit der Quantenfilmseite mittels UV-härtenden Klebers auf einem Saphirsubstrat fixiert. Das Substrat kann durch Schleifen oder Ätzen vorgedünnt werden, um dann im letzten Schritt mit einer schwachen Lauge restlos entfernt zu werden. Die Voraussetzung für eine nach dem Ätzen zurückbleibende hohe Qualität der Quantenfilme ist eine Stoppschicht zwischen Substrat und Quantenfilmen, die einen chemisch selektiven Ätzprozess erlaubt. Für das Substratmaterial Galliumarsenid kam hierbei eine Lauge aus Ammoniak und 30%-iger Wasserstoffperoxidlösung zum Einsatz, deren pH-Wert für das Vorätzen auf 8,9 eingestellt und nach Dünnen des Substrats auf 8,2 reduziert wurde. Nach dem Erreichen der Ätzstoppschicht wurde diese in einem weiteren Ätzschritt mit Flusssäure entfernt. Der abschließende Schritt kann ausgelassen werden, wenn anhand einer Sichtkontrolle schon nach dem Entfernen des Substrats eine hohe Oberflächenqualität festgestellt werden kann.

Abbildung 2.11 (oben) zeigt das differentielle Absorptionsspektrum analog zu Abb. 2.5, hier jedoch mit hoher zeitlicher Auflösung um den Zeitpunkt der Anregung zentriert. Die Ladungsträger wurden bei einer Energie von 1,416 eV (875 nm) injiziert, was durch das rote Dreieck angedeutet ist, und induzieren eine Absorptionsänderung an den drei Übergängen bei 1,180 eV (1050 nm, hh1-e1), 1,321 eV (938 nm, lh1-e1) und 1,357 eV (913 nm, hh2-e2). Das Ausbleichen der Absorption scheint hier zunächst zu verschiedenen Zeiten aufzutreten. Bevor jedoch eine definierte Aussage getroffen werden kann, muss die intrinsisch in der Weißlichterzeugung auftretende Energieabhängigkeit des Zeitnullpunkts bestimmt und die Messdaten müssen entsprechend korrigiert werden, wie in Abschnitt 2.1.1 erläutert.

Im unteren Teil der Abbildung ist das entsprechend korrigierte Spektrum dargestellt. Die schrägen, hellblauen Spuren, die sich durch den Graphen ziehen, sind Artefakte, die durch die Korrektur einzelner leicht systematisch gegeneinander verschobener Spektren entstehen. Nach der Korrektur ist zwar kein zeitlicher Unterschied im Ausbleichen der Übergänge hh1-e1 und hh2e2 erkennbar, das Ausbleichen des Übergangs lh1-e1 folgt jedoch mit deutlichem zeitlichen Versatz.

Zur Veranschaulichung ist die differentielle Absorption der beiden energetisch höheren Übergänge rechts neben der Hauptabbildung nochmals vergrößert und

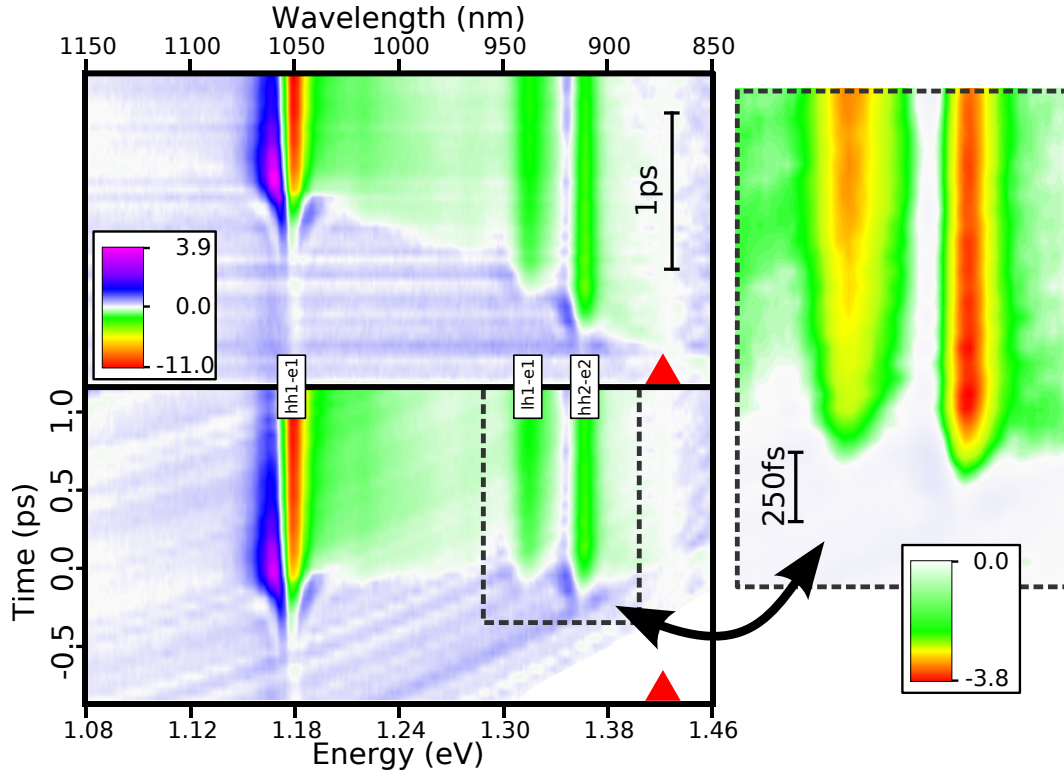


Abbildung 2.11: Nichtthermische Ladungsträgerverteilung in der Probe 23454. Im oberen Teil der Graphik ist die unkorrigierte Antwort des Elektronensystems dargestellt, wie sie direkt im Experiment ermittelt wurde. Die Ladungsträger wurden bei einer Energie von 1,416 eV (875 nm) injiziert, was durch das rote Dreieck angedeutet ist. Die Absorption scheint zunächst an den drei Zuständen zu verschiedenen Zeiten auszubleichen. Korrigiert man jedoch das Spektrum bezüglich des energieabhängigen Zeitnullpunkts des Abfrageimpulses, so erhält man ein zeitgleiches Ausbleichen der Übergänge hh1-e1 und hh2-e2, dem mit kurzem zeitlichen Versatz von etwa 160 fs das Ausbleichen des Übergangs lh1-e1 folgt. Dieser Zusammenhang ist am besten in der Vergrößerung erkennbar (rechts, Skala angepasst). Die Umverteilung der Ladungsträger geschieht für die in Dipolnäherung erlaubten Übergänge im Rahmen der hier erreichten Zeitauflösung instantan. Die Streuzeit zwischen dem zweiten Schwerloch- und dem ersten Leichtlochzustand ist durch den geringen Überlapp der Wellenfunktionen messbar.

mit angepasster Intensitätsskala dargestellt. Man erkennt anhand des Maßstabs, dass sich das Maximum der differentiellen Absorption am Übergang hh2-e2 in weniger und am Übergang lh1-e1 in deutlich mehr als 250 fs einstellt. Die genaue

Zeitdifferenz lässt sich durch die in Abb. 2.12 dargestellten Transienten der differentiellen Absorption an den drei Übergängen ermitteln. Die Transienten wurden hierbei zur besseren Vergleichbarkeit auf den sich bei großen Zeiten einstellenden negativen Wert normiert, so dass die Zeitdifferenz durch Vergleich der Zeiten bei Erreichen der halben Signalstärke ermittelt werden kann. Das Ausbleichen der Absorption an den Übergängen der Schwerlochzustände in die entsprechenden Leitungsbänder (schwarze und blaue Kurve) fällt zeitlich auf die dadurch definierte Zeitnull. Erst 160 fs später erreicht der Übergang des Leichtlochs in das Leitungsband (rot) die halbe endgültige Signalstärke.

Bedingt durch die generell sehr schnelle Ladungsträgerstreuung findet das Ausbleichen der Absorption an den beiden Schwerlochübergängen im Rahmen der zeitlichen Auflösung des Experiments instantan statt. Das Ausbleichen des Übergangs lh1-e1 ist direkt an die Besetzung des ersten Leichtlochzustandes gekoppelt. Dieser wird durch Streuprozesse aus dem zweiten Schwerlochzustand mit Ladungsträgern

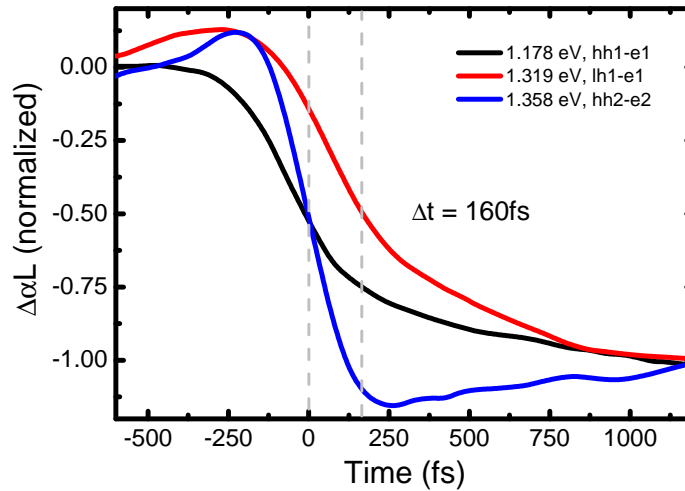


Abbildung 2.12: Transiente der differentiellen Absorption an den drei Übergängen des Quantenfilms. Nach der Korrektur des Zeitnullpunkts lassen sich die Zeitdifferenzen für das Ausbleichen der Absorption wie hier dargestellt bestimmen. Das Ausbleichen an den Übergängen der Schwerlochzustände in die entsprechenden Leitungsbänder (schwarze und blaue Kurve) fällt zeitlich auf die dadurch definierte Zeitnull. Erst 160 fs später erreicht der Übergang des Leichtlochs in das Leitungsband (rot) die halbe endgültige Signalstärke. Der Zeitversatz ist auf das für die Bevölkering des Leichtlochzustandes aus dem Schwerlochzustand erforderliche Kippen des Spins zurückzuführen.

aufgefüllt, was aufgrund der Spinauswahlregeln für Ladungsträgerstreuung in erster Näherung verboten ist. Eine Wechselwirkung mit Phononen scheidet ebenso aus, da das Phonon den Elektronenspin nicht aufnehmen kann. Da jedoch in III-V-Halbleitern in der Regel eine starke Spin-Bahn-Kopplung vorliegt, ist der Spin der Lochbänder keine gute Quantenzahl. Im Quantenfilm entstehen durch die Quantisierung in Wachstumsrichtung (o.E. die z-Achse) neue Eigenzustände, die auch Eigenzustände der Projektion des Gesamtdrehimpulsoperators \vec{J} auf die z-Achse J_z sind. Direkt an den jeweiligen Kanten der Lochsubbänder bei $\vec{k} = 0$ liegen somit zwar die reinen Eigenzustände vor, die durch die Spinauswahlregeln keine Übergänge untereinander zulassen; betrachtet man aber $\vec{k} \neq 0$, wie sie im Kontinuum der jeweiligen Zustände vorliegen, so sorgt die Kopplung für Mischzustände¹⁹, für die andere Auswahlregeln gelten [Alt86, Bas88, Sha89, Fer91]. Im vorliegenden Fall bedeutet dies, dass Übergänge aus dem zweiten Schwerlochzustand ins Kontinuum des ersten Leichtlochzustandes nicht mehr den strikten Spinauswahlregeln der Zonenmitte unterliegen. Der Streuprozess ist damit nicht verboten, weist aber im Vergleich zu den Streuprozessen zwischen den Schwerlochzuständen eine langsamere Dynamik auf. Mit dieser Betrachtung kann die in Bezug auf das gesamte Ladungsträgersystem nichtthermische Verteilung auch als Koexistenz von zwei jeweils thermalisierten Verteilungen in den beiden Spinsubsystemen aufgefasst werden.

¹⁹engl. „band-mixing effect“

2.3 Ge/SiGe Multiquantenfilme auf Silizium

Die indirekte Bandstruktur von Silizium lässt das Material, wie bereits eingangs erwähnt, nur sehr ineffizient Licht emittieren. Durch die, wie in der schematischen Abbildung 2.13 gezeigt, im Quasiimpulsraum gegeneinander versetzten Extrema des Leitungs- und des Valenzbandes kommt es nach der Anregung im Quasigleichgewicht zu einer asymmetrischen Verteilung der Ladungsträger, wobei sich die Löcher in der Mitte der Brillouinzone sammeln und die Elektronen in Richtung des Δ -Minimums streuen. Da Photonen mit zu einem Übergang passender Energie einen verschwindend geringen Impuls aufweisen, können sie unter Erhaltung von Energie und Quasimpuls nur dann emittiert werden, wenn gleichzeitig ein Phonon am Prozess beteiligt wird. Der somit vorliegende Dreiteilchenprozess ist deutlich unwahrscheinlicher als ein phononenloser Prozess, wie er in einem direkten Material wie beispielsweise (GaIn)As stattfinden kann.

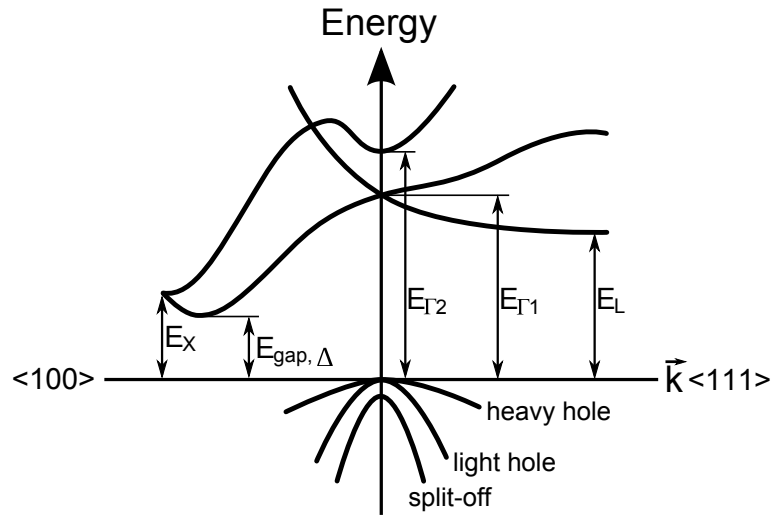


Abbildung 2.13: *Bandstruktur von Silizium als Volumenmaterial. Die Bandlücke von $E_{gap} = 1,12$ eV ist indirekter Natur, da das entsprechende Leitungsbandminimum sich auf der Δ -Achse des reziproken Raumes befindet. Am X-Punkt beträgt der Abstand zu den Lochbändern $E_X = 1,2$ eV, am Minimum in Richtung $\langle 111 \rangle$, wo der mit L bezeichneten Hochsymmetriepunkts liegt, ergibt sich $E_L = 2,0$ eV. Im Zentrum des reziproken Raums sind die aufzubringenden Energien mit $E_{\Gamma 1} = 3,4$ eV bzw. $E_{\Gamma 2} = 4,2$ eV bereits sehr hoch und nur noch mit Licht im nahen UV erreichbar. Der energetisch niedrigste direkte Übergang zeichnet sich durch seine sattelpunktähnliche Form aus.*

Eine weitere Eigenschaft der Bandstruktur von Silizium ist das erst bei sehr hohen Energien liegende lokale Minimum des Leitungsbandes am Γ -Punkt bei 4,2 eV, was es sehr unwahrscheinlich erscheinen lässt, aus diesem Material durch bandstrukturbeeinflussende Methoden einen direkten Halbleiter herzustellen. Die Problematik wird durch die energetisch niedriger liegenden, sattelpunktartigen Bänder noch erschwert. Aus diesen Gründen weist reines, monokristallines Silizium als Volumenkristall prinzipiell schlechte Voraussetzungen für ein Lasermaterial auf.

Germanium, dessen Bandstruktur in Abb. 2.14 dargestellt ist, besitzt ebenso einen indirekten fundamentalen Übergang. Die Bandlücke des Materials ist mit $E_{gap} = 0,66$ eV deutlich geringer als die von Silizium mit $E_{gap} = 1,12$ eV. Der niedrigste direkte Übergang weist eine Energiedifferenz von 0,8 eV auf und wird im Folgenden als direkte Bandlücke bezeichnet. Generell tendiert das Material im Vergleich zu kleineren energetischen Abständen von Valenz- und Leitungsband,

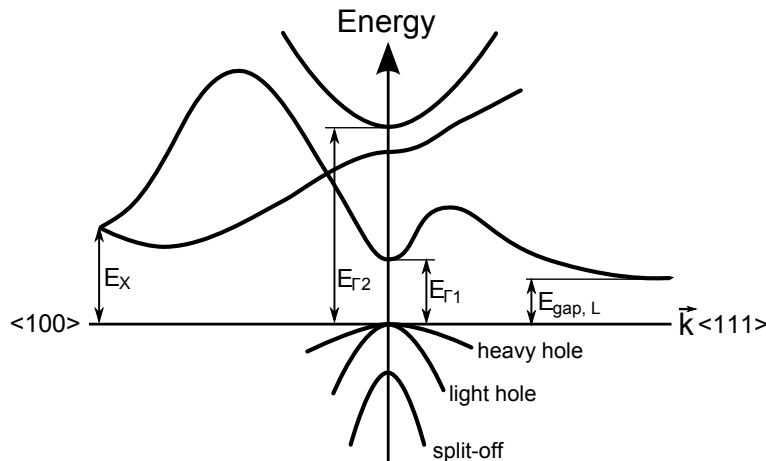


Abbildung 2.14: Bandstruktur von Germanium als Volumenmaterial. Auch hier ist die Bandlücke durch das in diesem Fall am L-Punkt liegende energetische Minimum des Leitungsbandes indirekter Natur. Die Bandlücke ist mit $E_{gap} = 0,66$ eV geringer als bei Silizium, was sich tendenziell im Vergleich auch bei den Übergängen am X-Punkt mit $E_X = 1,2$ eV und den Übergängen am Γ -Punkt mit $E_{\Gamma 1} = 0,8$ eV und $E_{\Gamma 2} = 3,22$ eV zeigt. Im Gegensatz zu Silizium weist das unterste Leitungsband am Γ -Punkt ein lokales Minimum auf. Die im Quantenfilm vierfache Entartung des Minimums am L-Punkt und die großen effektiven Masse von $m_{L, longitudinal} = 1,64 m_e$ und $m_{L, transversal} = 0,082 m_e$ bedingen die sehr große Zustandsdichte. Die effektive Masse am Γ -Punkt beträgt $m_{\Gamma} = 0,041 m_e$.

was durch den größeren Atomradius und die dadurch größere Gitterkonstante hervorgerufen wird. Im Gegensatz zu Silizium bildet sich im Leitungsband am Γ -Punkt ein lokales Minimum aus, so dass hier eine in sich stabile Ladungsträgerpopulation erzeugt werden kann, die aber durch den schnellen Relaxationskanal der Streuung in das indirekte Leitungsband in Richtung des L-Minimums verhindert wird. Im weiteren Verlauf wird die Streuung von Elektronen in Leitungsbandzustände in der Umgebung des Γ -Punktes als Streuung ins direkte Leitungsband und die Streuung in Zustände in der Umgebung des L-Punktes als Streuung ins indirekte Leitungsband bezeichnet.

Ein seit langem verfolgter Ansatz, der beide angesprochenen Probleme anzugehen versucht, besteht in einer Legierung der beiden chemisch nah verwandten Elemente. Durch die unterschiedlichen Gitterkonstanten von 5,43 Å (Silizium, $T=300$ K) und 5,65 Å (Germanium, $T=300$ K) ergibt sich die Möglichkeit, die Strukturen mit einer variablen Verspannung herzustellen, die durch die Komposition der Legierung vorgegeben wird. Außer der Bandlücke der Verbindung $\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x}$, die sich über das Mischungsverhältnis der beiden Komponenten einstellen lässt, kann hiermit noch die relative Lage der einzelnen Bänder in gewissen Grenzen eingestellt werden. Das seitens der Materialforschung formulierte Ziel, auf diese Weise einen direkten Halbleiter zu erhalten, konnte bis zum gegenwärtigen Zeitpunkt noch nicht erreicht werden.

Es sei der Vollständigkeit halber erwähnt, dass $\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x}$ ganz hervorragende elektronische Eigenschaften zeigt, die es zu einem hochinteressanten Material für Hochfrequenzelektronik machen [Har04]. Die durch die Verspannung deutlich erhöhten Ladungsträgerbeweglichkeiten ermöglichen das Fertigen von Hochfrequenztransistoren mit Transitfrequenzen²⁰ im Bereich von hunderten von GHz [Kri06]. In der Mikroprozessorindustrie wird die Legierung seit einigen Jahren unter der Bezeichnung „strained silicon“ eingesetzt. Rekordfrequenzen dieser Größenordnung sind zwar auch in III-V-Halbleitern erreicht worden [Haf05], diese lassen aber aufgrund der bereits erwähnten Schwierigkeiten bezüglich Wachstum und Gitteranpassung keine monolithische Integration in die Siliziumelektronik zu und erfordern zudem durch die Toxizität von Arsen einen aufwändigen Entsorgungsprozess.

²⁰Transitfrequenz: Frequenz, ab der der Transistor keine Verstärkung mehr aufweist und somit keinen sinnvollen Betrieb mehr erlaubt.

2.3.1 Probenstruktur

Bei der Probe „8009“ handelt es sich um eine 50-fach Multiquantenfilmstruktur aus Germanium, deren Aufbau schematisch in Abb. 2.15 gezeigt ist. Die Quantenfilme von 14,3 nm Dicke sind jeweils durch einen zum Quantenfilm verspannten Puffer aus $\text{Si}_{0,15}\text{Ge}_{0,85}$ mit einer Dicke von 19,8 nm getrennt, um das elektronische Confinement zu erreichen. Um die Struktur auf ein Siliziumsubstrat aufbringen zu können, ist eine Kompensation der Verspannung nötig. Dies wird durch zwei Schichten erreicht, deren Kombination ermöglicht, die eigentlichen Quantenfilme defektfrei und monokristallin aufzubringen.

Ausgehend vom Substrat, welches zur Kompatibilität mit Fertigungsprozessen in der Mikroelektronik in $\langle 100 \rangle$ -Kristallrichtung geschnitten wurde, folgt zunächst eine Pufferschicht aus $\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x}$, in der das Kompositionsverhältnis x kontinuierlich von 1 auf 0,1 gesenkt wurde. Beim Wachstum wurde ein Konzentrationsgefälle von 7%/μm verwendet, so dass sich eine Gesamtdicke der Pufferschicht von 13 μm ergibt. Zum Ausheilen etwaiger Defekte wird hierauf eine 2 μm dicke Schicht $\text{Si}_{0,1}\text{Ge}_{0,9}$ mit dem am Ende erreichten Kompositionsverhältnis aufgebracht. Das

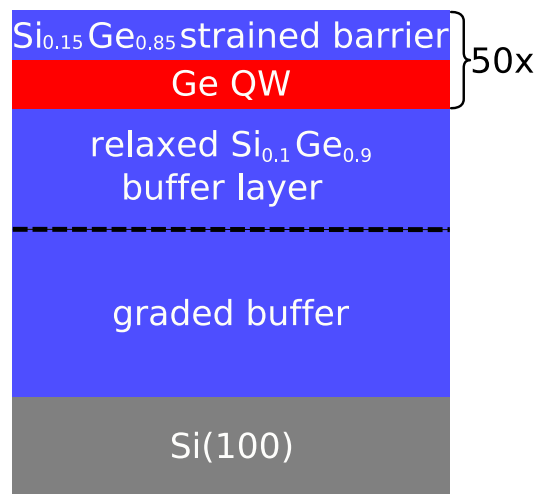


Abbildung 2.15: Schematische Darstellung der Struktur der Probe 8009. Auf das in $\langle 100 \rangle$ -Richtung orientierte Substrat wurde per LEPECVD ein Puffer aus $\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x}$ mit linearem Konzentrationsgradienten von anfänglich $x = 1,0$ bis $x = 0,1$ aufgebracht. Die Dicke des Puffers beträgt 13 μm. Ein 2 μm dicker relaxierter Puffer aus $\text{Si}_{0,1}\text{Ge}_{0,9}$ sorgt für das Ausheilen von Defekten. Es folgt ein 50-fach ausgeführter Stapel aus 14,3 nm dicken Germaniumquantenfilmen und 19,8 nm dicken Confinementschichten aus $\text{Si}_{0,15}\text{Ge}_{0,85}$.

so entstandene virtuelle Substrat bietet dann die Basis für den Stapel aus Quantenfilmen und Confinementschichten.

2.3.2 Wachstum

Im Gegensatz zu den bei III-V Materialien gebräuchlichen Wachstumsmethoden wie MOVPE oder MBE ist bei Silizium-Germanium die LEPECVD²¹ in Kombination mit den Trägergasen Monogerman (GeH_4) und Monosilan (SiH_4) gebräuchlich [Ros98, Kän02]. Sie stellt eine Erweiterung der Gasphasenepitaxie dar und bringt den Vorteil einer von der Substrattemperatur weitgehend unabhängigen Wachstumsrate mit sich.

Wird wie bei MOVPE das Trägergas für die aufzubringende Substanz über das Substrat geleitet, ergibt sich eine von der Wachstumstemperatur exponentielle Abhängigkeit der Wachstumsrate. Sollen Schichten aufeinander gebracht werden, die eine hohe Verspannung aufweisen, muss die Wachstumstemperatur niedrig gehalten werden, da sonst ausreichend thermische Aktivierungsenergie vorhanden ist, um diverse Ausbildungen von Kristallfehlern hervorzurufen. Dies wiederum hat eine zum Teil drastisch verringerte Abscheidungsrate zur Folge und gibt somit Grenzen für die Kompositionsbereiche der Schichten vor.

Bei LEPECVD hingegen wird die Abscheidung maßgeblich durch ein Argonplasma bestimmt, welches in der Wachstumskammer bei einer Energie von etwa 10 eV auf das Substrat gestrahlt wird. Die bei Silizium ohnehin auch bei hohen Temperaturen sehr geringe Abscheidungsrate der Trägergase von typischerweise $10 \text{ nm} \cdot \text{min}^{-1}$ (1000°C) kann durch LEPECVD problemlos auf $600 \text{ nm} \cdot \text{min}^{-1}$ gesteigert werden. Ein weiterer Vorteil der Methode besteht in der schnellen Modulierbarkeit des Plasmas, welche es erlaubt, äußerst scharfe Schichtgrenzen zu erzeugen. In Ref. [Dou04] ist eine Zusammenfassung der Vor- und Nachteile der verschiedenen Wachstumstechniken für Silizium-Germanium-Verbindungen gegeben.

Die Qualität der Proben ist unter anderem an der sehr hohen optischen Zerstörschwelle bei Impulsanregung erkennbar, die mehr als eine Größenordnung über der von typischen GaAs-basierten Proben liegt. Beim zeitlichen Überlapp von Anregung und Abfrage zeigen sich keine Mehrphotoneneffekte, so dass Ultrakurzzeitmessungen auch ohne Entfernen des Substrats möglich sind. Diese Prozesse haben bei vorausgehenden Experimenten mit hoher Zeitauflösung stets ein starkes Störsignal hervorgerufen, wodurch Zeitbereiche unmittelbar nach der

²¹engl. LEPECVD = **L**ow-**E**nergy **P**lasma-**E**nhanced **C**hemical **V**apour **D**eposition, zu Deutsch etwa „plasmaverstärkte Niedrigenergie-Gasphasenepitaxie“

Anregung der Probe nur mit einer speziell präparierten Probe zugänglich waren, bei der nur noch die Quantenfilme vorlagen.

2.3.3 Ultrakurzzeitdynamik

In Abb. 2.16 sind die bei Raumtemperatur, bei 100 K und bei 10 K gemessenen linearen Absorptionsspektren der Probe dargestellt. Die Stufenform ist am

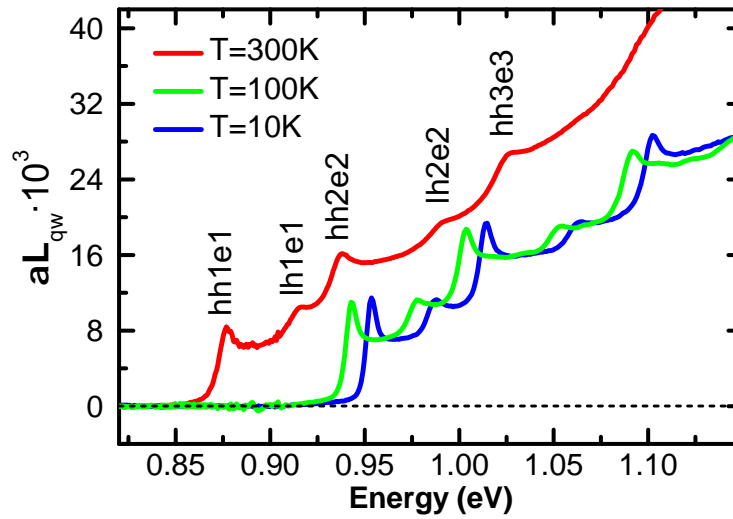


Abbildung 2.16: Lineares Absorptionsspektrum der Germaniumquantenfilme (Probe 8009) bei 300 K, 100 K und 10 K. Der Wert der Absorption ist auf einen einzelnen Quantenfilm umgerechnet. Bei Raumtemperatur liegt die fundamentale direkte Bandlücke bei 0,869 eV (1425 nm), entsprechend dem Übergang vom ersten Schwerlochband ins erste direkte Leitungsband (hh1-e1). Bei höheren Energien folgen weitere Übergänge aus dem ersten Leichtlochband ins erste direkte Leitungsband bei 0,918 eV (lh1-e1, 1350 nm), aus dem zweiten Schwerlochband ins zweite direkte Leitungsband bei 0,935 eV (hh2-e2, 1325 nm) und aus dem zweiten Leichtlochband ins zweite direkte Leitungsband bei 0,991 eV (lh2-e2, 1250 nm). Die Übergänge aus den Schwerlochzuständen zeigen eine deutliche exzitonische Überhöhung, die bei allen Temperaturen gut erkennbar ist. Bei tiefen Temperaturen zeigen sich sogar an den Leichtlochübergängen leichte exzitonische Überhöhungen. Die Vergrößerung der direkten Bandlücke bei den Tieftemperaturmessungen im Vergleich zur Raumtemperaturmessung beträgt etwa 65 meV bei 100 K und 80 meV bei 10 K.

deutlichsten bei den Tieftemperaturmessungen ausgeprägt. Durch Vergleich mit einer 8-Band $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ -Rechnung aus [Pau08, Tsu06] für die gleiche Probenstruktur und dem dabei ermittelten Bandschema (Abb. 2.17) lassen sich die fundamentalen Übergänge identifizieren.

Dem bereits verwendeten Namensschema folgend wird der energetisch niedrigste Übergang bei 0,869 eV (1425 nm) vom ersten Schwerlochzustand in den ersten direkten Leitungsbandzustand mit hh1-e1 bezeichnet. Es folgen der Übergang des ersten Leichtlochbandes in das erste direkte Leitungsband (lh1-e1) bei 0,918 eV (1350 nm) und die analog bezeichneten Übergänge hh2-e2 (0,935 eV, 1325 nm), lh2-e2 (0,991 eV, 1250 nm) und hh3-e3 (1,027 eV, 1206 nm).

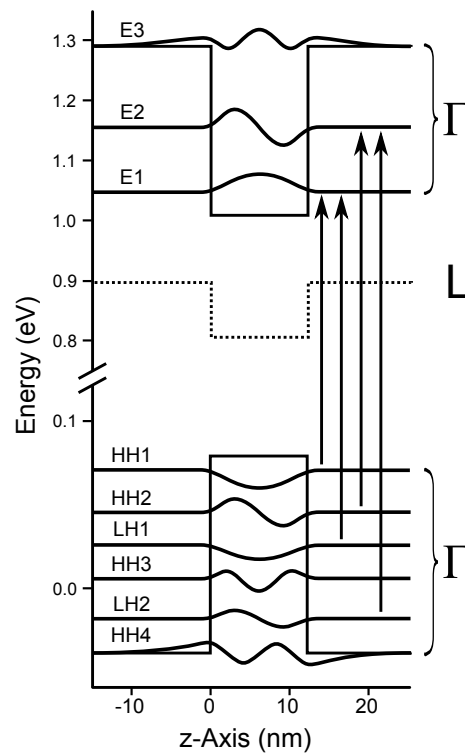


Abbildung 2.17: *Extrema der Bandstruktur, ermittelt durch eine $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ -Rechnung (nach [Pau08, Tsu06]). Die Abbildung zeigt die räumliche Struktur der Bandkanten für einen Quantenfilm in Wachstumsrichtung, die energetische Lage der Subbänder am Γ -Punkt und schematisch die zugehörigen Wellenfunktionen. Durch die Pfeile rechts sind die im Text diskutierten Übergänge verdeutlicht. Die Bandkante des indirekten Leitungsbandes (Minimum am L-Punkt) ist zur Veranschaulichung gestrichelt eingezeichnet.*

Wie bei der auf (GaIn)As basierenden Probe *mod24* im Abschnitt 2.2.2 sind die Übergänge auch hier durch eine exzitonische Resonanz überhöht, wobei der Effekt in diesem Fall auch bei den höheren Übergängen aus den Schwerlochbändern erkennbar ist. Betrachtet man die Leichtlochübergänge bei den Tieftemperaturmessungen genau, ist auch hier eine leichte Erhöhung über die Stufenform hinaus zu erkennen. Durch die bei tiefen Temperaturen weniger starke Verbreiterung durch Fluktuationen der Gitterkonstante sind die Resonanzen schmäler und dementsprechend höher. Die Vergrößerung der direkten Bandlücke bei den Tieftemperaturmessungen im Vergleich zur Raumtemperaturmessung beträgt etwa 65 meV bei 100 K und 80 meV bei 10 K. Das kleinskalige, spektral schnell variierende Störsignal im Bereich von 0,9 eV kommt durch die Absorption durch Wasserdampf aus der Luft zustande.

Um die Ultrakurzzeitdynamik des elektronischen Systems zu untersuchen, wurde zunächst eine Anregung mit den etwa 80 fs langen Impulsen, die der OPA generiert, vorgenommen. Die exemplarisch gewählte Pumpenergie von 0,918 eV (1350 nm) entspricht dem Übergang vom ersten Leichtlochband in den ersten direkten Leitungsbandzustand (lh1-e1). In Abb. 2.18 ist die differentielle Absorption pro Quantenfilm als Falschfarbengraph analog zu Abb. 2.5 dargestellt, hier jedoch mit hoher Zeitauflösung im Bereich von -1 ps bis 1,5 ps.

Das Verhalten der Absorption lässt sich in drei Zeitbereiche aufteilen, die jeweils ein charakteristisches und deutlich voneinander verschiedenes Verhalten aufweisen. Zu negativen Zeiten lassen sich kohärente Oszillationen [Koc88, Lin88b] der Polarisation beobachten (siehe hierzu auch Anhang 6.5). In diesem Zeitbereich erreicht der Abfrageimpuls die Probe vor dem Anregungsimpuls und erzeugt eine kohärente Polarisation, die schließlich beim Auftreffen des Anregungsimpulses zum Abstrahlen gebracht wird. Hierbei wird im differentiellen Signal eine Modulation erzeugt, deren Wellenlänge eine Funktion der zeitlichen Verzögerung t_{pp} ist und deren Amplitude exponentiell mit wachsender negativer Verzögerung abfällt. Wird die Zeitnull erreicht, divergiert die Wellenlänge der Oszillationen, wie es in Abb. 2.18 im Bereich des hh1-e1-Übergangs gut zu sehen ist. Zur Verdeutlichung sind einzelne spektrale Schnitte zu verschiedenen Zeiten aus dem durch das graue, gestrichelte Rechteck unten links markierten Bereich im Einsatz oben rechts aufgetragen. Anhand der Wasserfalldarstellung mit jeweils etwa 110 fs Abstand zwischen zwei Spektren (von unten nach oben zunehmende Zeit) lässt sich gut erkennen, wie sich sowohl die Wellenlänge als auch die Amplitude der Oszillationen mit der Zeit vergrößern. Die Zeitnull des Experiments kann über diesen Mechanismus sehr elegant kalibriert werden, da über die Divergenz der kohärenten Oszillationen gewissermaßen die interne Uhr des Systems zugänglich

ist und die Koinzidenz von Anregung und Abfrage somit intrinsisch bei jeder Messreihe ermittelt wird.

Beim Erreichen der Zeitnull liegt das stärkste negative differentielle Signal vor. Die durch den Anregungsimpuls hervorgerufene Polarisierung ist bereits zum Teil in Population umgesetzt, die innerhalb sehr kurzer Zeit durch schnelle Streuprozesse eine Umverteilung erfährt. Hierbei kommt es zum einen durch Wechselwirkung mit Phononen zu Energieabgabe aus dem Elektronensystem an das Kristallgitter, zum anderen aber auch durch elastische Stöße der Ladungsträger untereinander zu einer energieerhaltenden Umverteilung, die schließlich jeweils eine Fermiverteilung der Ladungsträger in Leitungs- und Valenzband herbeiführt. Durch elastische Streuung können Elektronen zu Energien oberhalb der bei der Injektion erreichten Energie befördert werden, wie im vorliegenden Fall anhand der Bevölkerung der $hh2$ - und $e2$ -Zustände mit dem zugehörigen Übergang bei $0,935\text{ eV}$ ersichtlich ist. Mit leichtem zeitlichen Versatz im Bereich von wenigen 10 fs wird auch der Grundzustand bei $0,869\text{ eV}$ bevölkert. Die Lebensdauer in allen drei Zuständen ist durch das sofort mit dem Einsetzen der Population wirksame Streuen in das energetisch am tiefsten gelegene indirekte Leitungsband stark begrenzt. Durch die vierfache Entartung des indirekten Bandes am L-Punkt und der großen effektiven Masse ist die Zustandsdichte hier sehr groß, wodurch alle erzeugten Ladungsträger aufgenommen werden können.

Nach etwa 500 fs ist dieser abschließende Streuprozess beendet, und eine Quasigleichgewichtsphase stellt sich für den gesamten folgenden Zeitraum von 10 ns ein, in der im Rahmen dieses experimentellen Aufbaus keine Veränderung des differentiellen Signals erkennbar ist. Die Lebensdauer der im Quasigleichgewicht besetzten Zustände liegt folglich deutlich über 10 ns . Sämtliche Ladungsträger im Leitungsband befinden sich im indirekten Leitungsband, von wo aus sie nur mit sehr geringen Raten rekombinieren, da keine direkten Übergänge ins Valenzband möglich sind. Durch die geringere Wahrscheinlichkeit der verbleibenden phononenassistenten Prozesse erreichen die Lebensdauern Werte von bis zu mehreren μs [Sch90].

Der Quasigleichgewichtszustand kann durch zwei Eigenschaften charakterisiert werden. Zum einen bewirkt die signifikante Ladungsträgerpopulation im indirekten Band ein Abschirmen von Ladungen [Pey84, Kur02], was eine Verschiebung der Resonanzen bewirkt. Da die Messmethode die differentielle Absorption ermittelt, spiegelt sich die Verschiebung einer Resonanz in einem dispersiven Signal wieder, das durch die Subtraktion zweier gegeneinander verschobener Absorptionslinien entsteht. Solche Signale liegen beispielsweise besonders deutlich ausgeprägt am Grundzustand mit exzitonischer Überhöhung vor, wenn das Signal der unangeregten Struktur mit dem der angeregten verglichen wird, ersichtlich an den

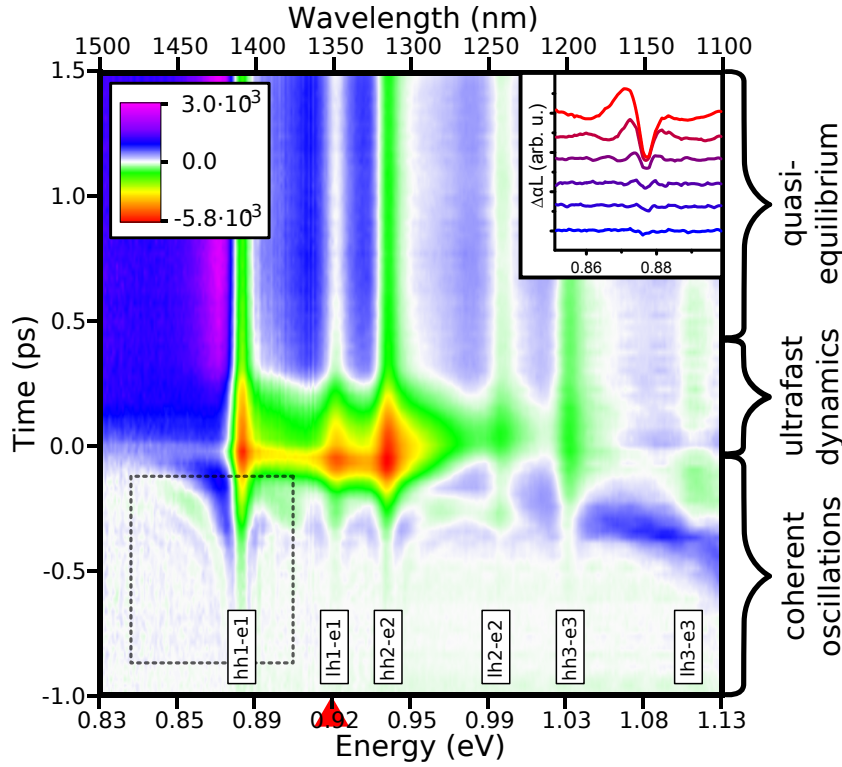


Abbildung 2.18: *Transiente differentielle Absorption der Germaniumquantenfilme (Probe 8009), resonant zum Übergang lh1-e1 angeregt mit einem Impuls von 80fs Dauer bei 0,918 eV (durch rotes Dreieck markiert). Die Änderung der Absorption ist in Falschfarben kodiert und in Abhängigkeit von Energie und Zeit gezeigt. Auch hier ist das Signal auf einen Quantenfilm umgerechnet, um eine bessere Vergleichbarkeit zu gewährleisten. Die Probe zeigt fünf deutlich ausgeprägte Resonanzen, denen in Abb. 2.16 die entsprechenden Übergänge zugeordnet sind. Im oberen rechten Einsatz zeigen spektrale Schnitte zu von unten nach oben steigenden Zeiten (-800 fs, -680 fs, -570 fs, -460 fs, -350 fs und -240 fs) die kohärenten Oszillationen, die sich am Grundzustand des Systems vor der Zeitnull aufbauen und den Zeitnullpunkt des Experiments definieren.*

nebeneinander liegenden grünlichen und bläulichen vertikalen Streifen. Aufgrund der fehlenden Besetzung der durch optische Übergänge sichtbaren Zustände ist die Abschirmwirkung nicht vollständig ausgebildet und zeigt ein von der Anregungsintensität abhängiges Verhalten [Hau04, Olb91, Bin91].

Zum anderen wird durch die sehr große Ladungsträgerdichte ein qualitativ neuer Absorptionsprozess vom indirekten Band aus in höherliegende Zustände

des Übergitters der Multiquantenfilmstruktur, in Zustände der Barriere und in Volumenzustände des Materials möglich. Dieser Mechanismus ist in ähnlicher Form unter anderem in Systemen mit direkter Bandlücke als Absorption von freien Ladungsträgern bekannt [Dum70, Lin88a]. Die Zustandsdichte der Zielzustände wird im Wesentlichen durch den Charakter der Zielzustände bestimmt und besitzt offenbar wenig Struktur, erreicht aber sehr hohe Werte. Das resultierende Absorptionsspektrum ergibt sich abgesehen von den Übergangsmatrixelementen aus der Faltung dieser Zustandsdichte mit der des indirekten Bandes und weist somit ebenso keine besondere Struktur auf [Sir92, Ger93], sondern ist über weite Energiebereiche flach und gleichförmig.

Der Einfluss der Absorption freier Ladungsträger ist auch in Abb. 2.18 ersichtlich. Im Bereich vom hh2-e2-Übergang bis weit unter die direkte Bandlücke erkennt man anhand der bläulichen Färbung, dass nach der Anregung eine Erhöhung der Absorption eintritt. Unterhalb der direkten Bandlücke, wo keine Absorption des Quantenfilms vorliegen kann, ist dieses Merkmal isoliert zugänglich. Hier beträgt die Erhöhung der Absorption etwa $\Delta\alpha L = 1 \cdot 10^{-3}$. Die Absorptionserhöhung beträgt damit nur etwa ein Sechstel der maximal erreichten Verringerung der Absorption, was durch die für positive und negative Werte separat gewählten Skalierungen zunächst fälschlich interpretiert werden kann. Zu höheren Energien hin läuft der Effekt langsam aus, bis er, unter diesen Anregungsbedingungen, oberhalb des hh2-e2-Übergangs nicht mehr erkennbar ist. Der Mechanismus wird bei der Diskussion der Anregung mit langen Impulsen in Abschnitt 2.3.5 genauer erläutert werden.

Die Ultrakurzzeitdynamik der Streuung lässt sich weiter untersuchen, indem man die Ladungsträger hoch im Band injiziert, so dass sie durch Streuprozesse einen energetisch breiten Bereich bis zum Endzustand überbrücken müssen. In der oberen Hälfte von Abb. 2.19 ist ein entsprechender differentieller Absorptionsgraph gezeigt. Die Anregung erfolgte hier bei 1,024 eV (1210 nm) mit einer Photonendichte von $1 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$.

Betrachtet man Einzelspektren, d.h. horizontale Schnitte durch den Graphen bei konstanter Zeitverzögerung, so wird offensichtlich, dass unmittelbar nach der Injektion der Ladungsträger eine Elektronenverteilung vorliegt, die sich auf hohe Energien konzentriert. Zu diesem Zeitpunkt fanden noch nicht genügend Streuprozesse statt, um im Elektronensystem eine Fermiverteilung einzustellen. Über die folgenden 500 fs lässt sich eindrucksvoll beobachten, wie sich der Schwerpunkt der Ladungsträgerverteilungen in Leitungs- und Valenzband kaskadenartig über die entsprechenden Zustände bewegt. Im Absorptionssignal macht sich diese Umverteilung durch das Ausbleichen der zu den Zuständen gehörenden Übergänge bemerkbar. Unter den vorliegenden Anregungsbedingungen kann man verfolgen,

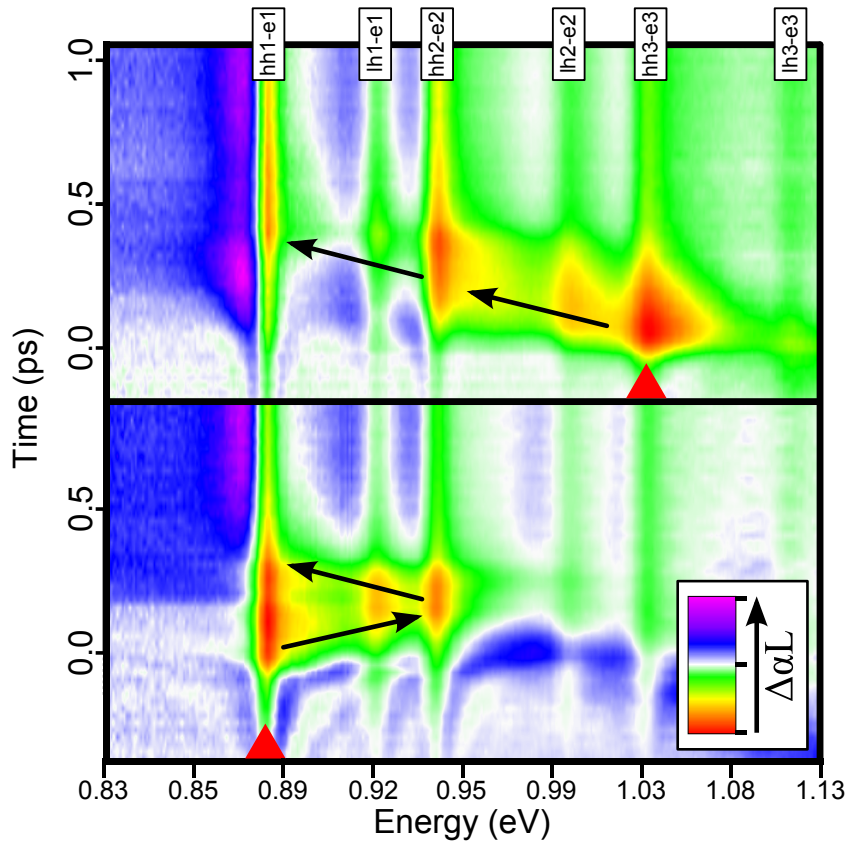


Abbildung 2.19: Nichtthermische Ladungsträgerverteilungen (Probe 8009) bei verschiedenen Anregungsenergien, jeweils mit rotem Dreieck markiert. Findet die Ladungsträgerinjektion energetisch hoch im Band bei 1,024 eV (1210 nm) statt (oben), so ergibt sich ein kaskadenartiges Herunterstreuen der Ladungsträger. Dabei wird die Absorption an den dazwischen liegenden Übergängen lh2-e2, hh2-e2, lh1-e1 und hh1-e1 nacheinander ausgebleicht. Nach der Injektion finden zusätzlich zu den Streuprozessen innerhalb des direkten Leitungsbandes fortwährend Streuprozesse der Elektronen ins indirekte Leitungsband statt, bis schließlich alle Elektronen dort verbleiben. Deutlich ist zu erkennen, dass sich erst etwa 250 fs nach dem Ladungsträgeraufbau bei der Injektionsenergie auch ein signifikantes Ausbleichen des hh1-e1-Übergangs stattfindet. Im unteren Teil ist das komplementäre Experiment mit zum Grundzustand resonanter Injektion bei 0,876 eV (1415 nm) gezeigt. Hier findet - ebenso mit zeitlichem Versatz - ein Hochstreuen statt, welches den lh1-e1-Übergang beeinflusst. Die notwendige Energie für das Aufheizen der Ladungsträgerverteilung gewinnt das System durch Streuprozesse in das energetisch tiefer gelegene indirekte Leitungsband.

wie nacheinander die Übergänge $hh3-e3$, $lh2-e2$, $hh2-e2$ und $lh1-e1$ ausgebleicht werden, bis schließlich die Elektronen den $e1$ -Zustand und die Löcher den $hh1$ -Zustand erreicht haben und nur noch der $hh1-e1$ -Übergang betroffen ist. Von dort findet, wie bereits diskutiert, schließlich noch die rasche Streuung der Elektronen in das indirekte Leitungsband statt. Es lässt sich beobachten, dass die Intensität des differentiellen Signals mit jedem Streuprozess abnimmt. Des weiteren findet eine Erhöhung der Absorption unterhalb der direkten Bandlücke schon kurz nach der Injektion der Ladungsträger statt, deutlich bevor der Schwerpunkt der Elektronenverteilung den Grundzustand des Quantenfilms erreicht hat. Beides zeigt, dass bereits während des Herunterstreuens der Elektronen innerhalb des direkten Leitungsbandes ein signifikanter Anteil in das indirekte Leitungsband gestreut wird.

Im Vergleich zum Materialsystem $(GaIn)As$ im Abschnitt 2.2.5 liegt hier eine deutlich langsamer ablaufende Dynamik vor. Die Ursache ist die jeweilige Ankopplung des Elektronensystems an das Phononensystem. Diese ist bei dem Legierungshalbleiter $(GaIn)As$ mit ungleicher Valenzelektronenkonfiguration durch die ionischen Anteile der Bindung sehr viel stärker ausgeprägt als bei Germanium, Silizium und ihren Legierungen. In der Einheitszelle von $(GaIn)As$ liegt durch diesen gemischt ionisch-kovalenten Bindungstyp eine im Vergleich zu Si deutlich inhomogenere Ladungsverteilung vor. Wird diese durch eine Auslenkung der Atome gegeneinander verändert, wie es durch optische Phononen geschieht, so kann eine Coulombwechselwirkung mit den freien Ladungsträgern stattfinden. Diese Art der Ladungsträgerstreuung wird als Fröhlich-Wechselwirkung [Frö52, Las84] bezeichnet. Die typischen Streuzeiten durch optische Phononen in III-V-Halbleitern mit ionischem Bindungsanteilen liegen im Bereich von 100 fs [Col54], hängen aber stark von der Ausprägung des ionischen Charakters ab [Tse97]. In der Einheitszelle eines isovalenten Halbleiters wie Silizium liegt dagegen eine homogene Ladungsverteilung vor, so dass keine Fröhlich-Wechselwirkung stattfindet. In diesem Fall dominiert die Deformationpotentialstreuung an optischen Phononen, bei der eine Auslenkung der Atome der Einheitszelle gegeneinander die Gitterkonstante der Struktur lokal beeinflusst und dadurch eine Potentialänderung hervorruft, die wiederum einen Streuprozess mit Ladungsträgern verursachen kann. Die Deformationpotentialstreuung wird für große Impulsüberträge, wie sie bei der Streuung ins indirekte Leitungsband erforderlich sind, wahrscheinlicher [Yu03].

Eine weiter ins Detail gehende Aufschlüsselung der Streuprozesse des oben in Abb. 2.19 dargestellten Experiments kann anhand der Transienten der differentiellen Absorption in Abb. 2.20 vorgenommen werden. Für die fünf Übergänge sind im Diagramm links jeweils die zeitlichen Schnitte abgebildet und rechts - farblich verknüpft - schematisch die Relationen, die sich durch die Streumechanismen

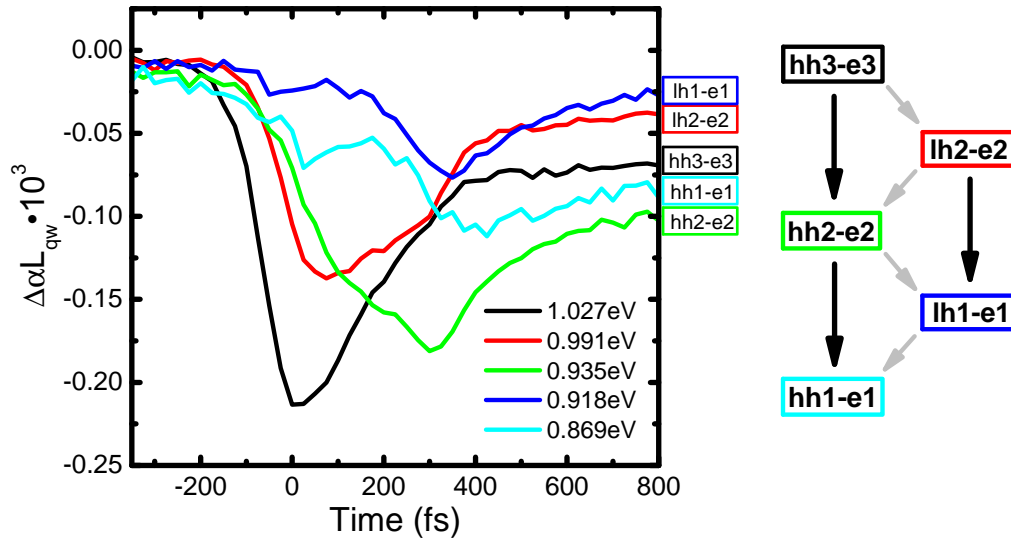


Abbildung 2.20: Transienten der kaskadenartigen Relaxation bei Anregung energetisch hoch im Band (Probe 8009). In der Grafik links sind Transienten der differentiellen Absorption an den fünf Übergängen der Germaniumquantenfilme dargestellt. Anhand des zeitlichen Verlaufs der Signalstärke lassen sich die im Schema rechts verdeutlichten Streukanäle identifizieren. Die differentielle Absorption des Übergangs hh2-e2 (grün) beispielsweise weist einen zeitlich zweigeteilten Verlauf auf, der durch zwei verschiedene Streumechanismen gesteuert wird. Die schnelle hh3-hh2-Streuung dominiert das Verhalten bis etwa 100fs nach der Zeitnull. Ab diesem Zeitpunkt flacht der Anstieg des Signals ab und die durch Spinauswahlregeln langsamere Streuung über den Zwischenzustand lh2 nimmt die Rolle der zu diesem Zeitpunkt bereits weitgehend abgeklungenen hh3-hh2-Streuung ein.

zwischen den beteiligten Zuständen ergeben. Die Streukanäle sind zur besseren Visualisierung zwischen den Übergängen dargestellt, obwohl die Streuung selbst zwischen den an den Übergängen beteiligten Zuständen stattfindet. Die Streuung zwischen Schwerloch- und Leichtlochzuständen ist durch graue Pfeile, die Streuung innerhalb eines Lochbandsystems durch schwarze Pfeile dargestellt.

Die Signalstärke des hh3-e3-Übergangs (schwarz), dessen Zustände durch die Anregung direkt bevölkert werden, erreicht, dem Anregungsimpuls folgend, schnell das Maximum. Der anschließende Zerfall weist keine besonderen Merkmale auf, so dass nach etwa 400 fs die endgültige Signalstärke erreicht wird. Deutlich verschieden verläuft die differentielle Absorption am Übergang hh2-e2 (grün). Der zweite

Schwerlochzustand wird zum einen direkt aus dem dritten Schwerlochzustand bevölkert, zum anderen aber auch aus dem zweiten Leichtlochzustand, der an dem Übergang lh2-e2 (rot) beteiligt ist. Hierbei findet zunächst die schnellere Streuung vom dritten in den zweiten Schwerlochzustand (hh3-hh2) statt, die bis 100 fs nach der Zeitnull die Signalfanke des Übergangs hh2-e2 bestimmt. In den darauffolgenden 200 fs findet ein weiterer, flacherer Anstieg des Signals statt, der durch den Beitrag der Streuung vom zweiten Leichtloch- in den zweiten Schwerlochzustand (lh2-hh2) dominiert wird. Zu diesem Zeitpunkt ist die Streuung innerhalb des Schwerlochbandes bereits weitgehend abgeklungen. Die Streuung über diesen zweiten Kanal verläuft gemäß der in erster Näherung durch Spinauswahlregeln verbotenen Übergänge zwischen Schwer- und Leichtlochzuständen deutlich langsamer als die Streuvorgänge innerhalb eines Spinsubsystems. Diese durch die Spinauswahlregeln mitbestimmte Dynamik wurde bereits in analoger Weise bei der ultraschnellen Absorptionsmessung der (GaIn)As-Probe in Abschnitt 2.2.5 beobachtet. In gleicher Weise lässt sich die Ladungsträgerdynamik des ersten Leichtloch- (lh1) und des ersten Schwerlochzustandes (hh1) zeitlich in zwei Bereiche unterteilen, wobei eine exakte Aufschlüsselung der einzelnen Zu- und Abflüsse durch die größere Möglichkeit an Kombinationen nicht mehr sinnvoll durchgeführt werden kann.

Als komplementäres Experiment wurde die Dynamik des Streuens zu höheren Energien untersucht. Die Anregung erfolgte in diesem Fall mit einer im Vergleich mehr als verdreifachten Photonendichte von $3,5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$ und energetisch resonant zum hh1-e1-Übergang bei 0,876 eV (1415 nm), wie in der unteren Hälfte von Abb. 2.19 ersichtlich. Die Elektronen haben gegenüber dem niedrigsten Zustand des direkten Bandes keine Überschussenergie, die ihnen durch Streuen untereinander erlauben würde, höhere Zustände zu besetzen. Durch Streuprozesse in das energetisch niedriger liegende indirekte Band kann jedoch diese Energie gewonnen werden, die dann in weiteren Streuprozessen Ladungsträger beider Art in höhere Zustände anregen kann, was sich wiederum im Ausbleichen der Übergänge lh1-e1 und hh2-e2 bemerkbar macht. Nach dem Erlöschen dieses Umverteilungsprozesses nach etwa 200 fs streuen schließlich sämtliche Elektronen wieder ins indirekte Leitungsband.

Neben verschiedenen Injektionsenergien lässt sich in Abb. 2.21 das Streuverhalten bei verschiedenen Temperaturen beobachten. Die Probe wurde in einem Heliumkryostaten bei verschiedenen Temperaturen jeweils resonant zum hh2-e2-Übergang angeregt, um vergleichbare Anregungsbedingungen zu erhalten. Bei einer Temperatur von 100 K (oben) erhöht sich die direkte Bandlücke um etwa 65 meV auf 0,939 eV (1320 nm). Die Vergleichsmessung bei Raumtemperatur ist im unteren Teil dargestellt. In beiden Fällen waren die Photonendichten vergleichbar

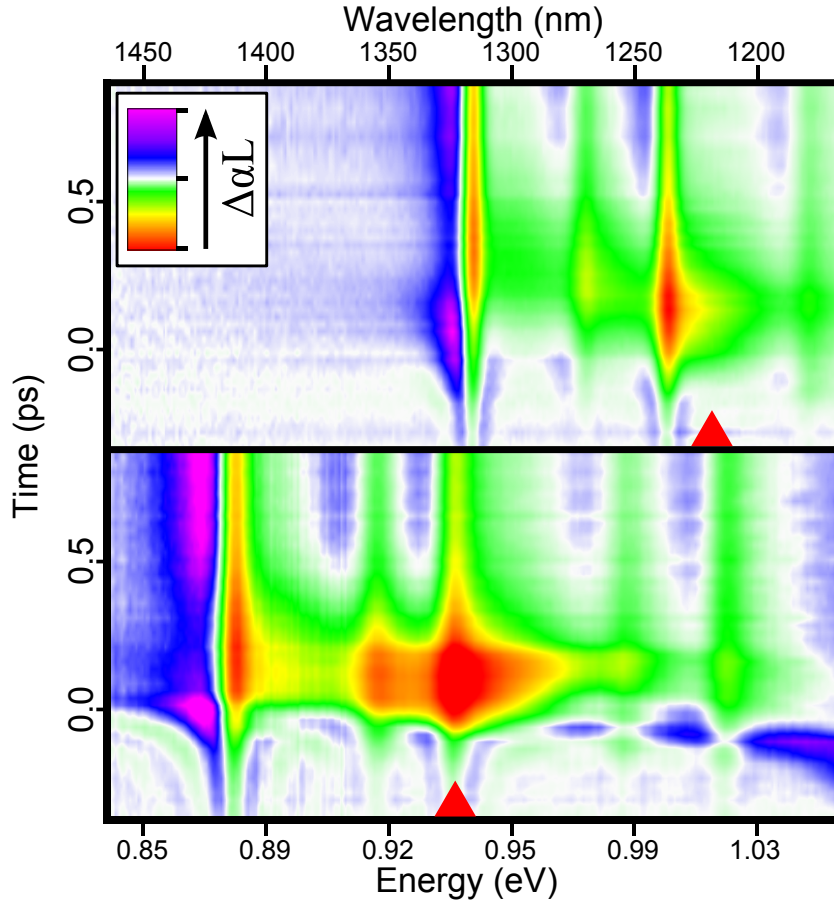


Abbildung 2.21: Unterschiedliche Streuzeiten für verschiedene Temperaturen bei Probe 8009. **Oben:** Experiment bei 100 K und einer Bandlückenerhöhung von etwa 65 meV auf 0,939 eV (1320 nm). Die Anregung fand bei 1,016 eV (1220 nm) statt und war somit zum hh2-e2-Übergang weitgehend resonant. **Unten:** Entsprechendes Experiment bei Raumtemperatur, mit gleicher Leistung, ebenfalls resonant zum hh2-e2-Übergang angeregt (hier 0,939 eV bzw. 1320 nm). Wie im Absorptionsspektrum (Abb. 2.16) zeigt sich bei 100 K eine Verschmälerung der Resonanzen. Die Streuzeit vom Punkt der Anregung zum Grundzustand vergrößert sich deutlich, was schon durch Betrachten der Graphen erkennbar ist. Anhand von transienten Schnitten, jeweils an den beiden spektralen Positionen, ergeben sich zeitliche Versätze von 80 fs bei 300 K und 200 fs bei 100 K.

und lagen im Bereich von $1 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$. Ermittelt man die Streuzeiten anhand des zeitlichen Versatzes der Signalfanken am hh2-e2 und hh1-e1-Übergang, so ergeben sich bei 100 K etwa 200 fs und bei 300 K nur noch 80 fs. Durch die niedrigere

Temperatur stehen weniger Phononen zur Verfügung, wodurch die Streuzeiten ansteigen und Umverteilungsprozesse entsprechend langsamer ablaufen.

Um auszuschließen, dass die Unterschiede in der Ladungsträgerdynamik nicht durch die Temperatur, sondern durch möglicherweise leicht verschiedenen hohe Ladungsträgerdichten hervorgerufen werden, wurden bei beiden Temperaturen jeweils zwei Referenzmessungen mit einmal deutlich höherer und einmal deutlich niedrigerer Anregungsdichte durchgeführt. Innerhalb einer solchen Serie von Messungen bei gleicher Temperatur wurden nur minimale Unterschiede im Streuverhalten festgestellt, die deutlich geringer ausfielen als die durch die Temperatur hervorgerufenen.

2.3.4 Ultrakurzzeitverstärkung

Die bisher gewonnenen Ergebnisse sprechen dem Material die Eigenschaft, für optische Verstärkung tauglich zu sein, zunächst scheinbar ab. Bei (GaIn)As war die Quelle der optischen Verstärkung eine hinreichend große Ladungsträgerpopulation im Leitungsband, die in Germanium durch den schädlichen Effekt des Wegstreuens in das indirekte Leitungsband nicht in einem Quasigleichgewichtszustand erreicht werden konnte. Dennoch lässt sich für einen kurzen Zeitraum diese Situation in einem ausreichenden Maße einstellen, um Verstärkung hervorzurufen.

In Abb. 2.22 sind links oben in (b) und unten in der Vergrößerung (a) experimentelle Absorptionsspektren bei 300 K für Zeiten kurz nach der Anregung (0 fs, 50 fs, 150 fs und 1600 fs, von unten, rot, nach oben, türkis) zusammen mit dem linearen Absorptionsspektrum (schwarz) dargestellt. Die maximale Verstärkung, deren Lebensdauer im Rahmen der bereits ermittelten Streuzeiten liegt, erreicht bis zu $2,5 \cdot 10^{-4}$ pro Quantenfilm. Trotz der im Vergleich zur Probe *mod24* etwa um zwei Größenordnungen erhöhten Anregungsphotonendichte von $2 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ bei 0,904 eV (1370 nm) ist die erzielte Verstärkung etwa eine Größenordnung kleiner. Im Gegensatz zu diesem Material, bei dem die wirksamen Dichten des Valenz- und des Leitungsbandes stets gleich groß sind, stellt sich in dem indirekten Halbleiter Germanium eine asymmetrische Situation ein. Das Valenzband ist bei der hohen Anregungsphotonendichte stark bevölkert und erhöht seinerseits den Phasenraumfüllfaktor bereits signifikant. Im Leitungsband sammeln sich die Ladungsträger schon kurz nach der Anregung im indirekten Bereich. Die im direkten Leitungsband noch kurzzeitig verbleibenden Elektronen reichen allerdings aus, um den Phasenraumfüllfaktor auf über 1 zu bringen und Verstärkung hervorzurufen. Der Vergleich mit den Anregungsdichten der auf GaAs basierten Strukturen zeigt, dass die Schwelle zur Verstärkung mit diesem Mechanismus

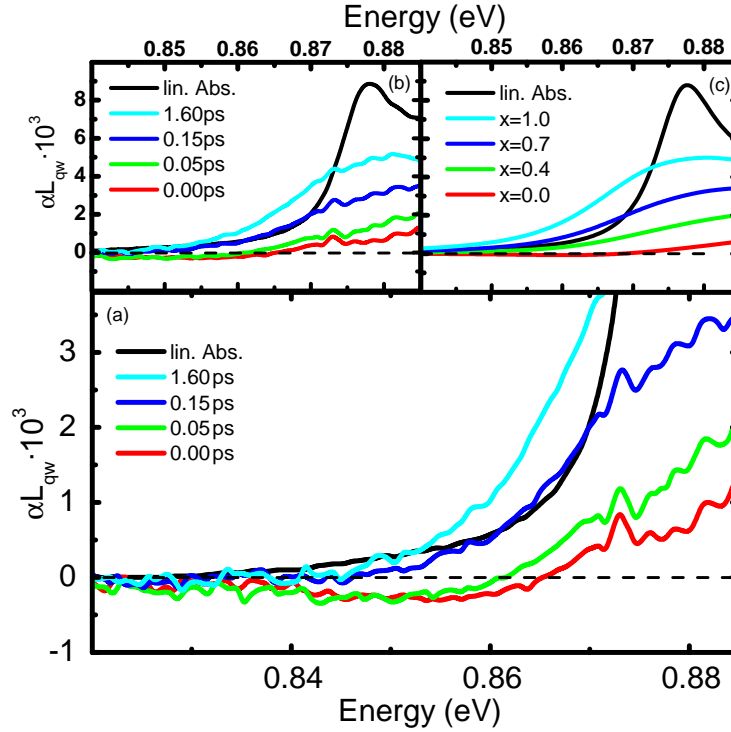


Abbildung 2.22: Ultrakurzzeitverstärkung, Vergleich experimenteller Daten mit mikroskopischer Theorie (Probe 8009). Die experimentellen Spektren links oben in (b) und unten in der Vergrößerung (a) zeigen die Absorption vor (schwarz) und kurz nach der Anregung (0 fs, 50 fs, 150 fs, 1600 fs, von unten nach oben). Die Verstärkung beruht auf einer Nichtgleichgewichtssituation, bei der sich Elektronen kurzzeitig im direkten Leitungsband aufhalten, bevor sie ins indirekte Leitungsband streuen. Die maximal erreichte Verstärkung beträgt $\alpha L = 2,5 \cdot 10^{-4}$ pro Quantenfilm und liegt damit eine Größenordnung unter der der (GaIn)As-Probe. In die Berechnung der theoretischen Spektren fließt die Ladungsträgerdichte für das Leitungsband ein, die aufgrund dessen Struktur in zwei Anteile aufgeteilt ist und hier mit $n = 7,5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ angesetzt wurde. Der Parameter $x = n_L / (n_L + n_T)$ gibt den relativen Anteil der Ladungsträger an, die bereits ins indirekte Leitungsband gestreut sind, und wächst somit mit der Zeit an. Rechts sind die entsprechenden Spektren dargestellt, mit Werten von 0,0, 0,4, 0,7 und 1,0 für x (von unten nach oben), und der linearen Absorption in schwarz. Die über den Vergleich ermittelte Streuzeit beträgt 140 fs.

erst bei etwa zwei Größenordnungen mehr Leistung überschritten wird, die erforderlichen Ladungsträgerdichten aber vergleichbar sind.

Um auch in diesem Fall quantitative Aussagen über Abkling- und Streuzeiten treffen zu können, wurde wie bei der Probe *mod24* in Abschnitt 2.2.3 ein Vergleich zur Theorie durchgeführt. Die mikroskopischen Rechnungen, die von Martin Schäfer²² durchgeführt wurden, basieren ebenso auf einer numerischen Auswertung der Halbleiter-Bloch- und der Halbleiter-Lumineszenz-Gleichungen. Im Anhang 6.1 werden die Halbleiter-Bloch-Gleichungen kurz vorgestellt, Details finden sich in Ref. [Hau04, Olb91, Bin91]. Im Speziellen wird die systematische Clusterentwicklung [Kir99a] benutzt, um Streuung im Elektronensystem über Korrelationsterme bis zur Triplettebene zu berücksichtigen. Die indirekte Form des Leitungsbandes erfordert eine Modifikation der Theorie dahingehend, dass sowohl die Elektronenkonzentration im direkten Leitungsband als auch im indirekten Leitungsband berücksichtigt wird. Hierfür wird ein Fraktionsparameter x eingeführt, welcher die relative Konzentration der Elektronen im indirekten Band wiedergibt:

$$x = \frac{n_L}{n_L + n\Gamma}. \quad (2.6)$$

Kurz nach einer Anregung hat dieser Parameter folglich den Wert $x = 0$ und erhöht sich mit fortschreitender Streuung bis er schließlich den Wert $x = 1$ erreicht. Die thermische Verteilung der Elektronen bewirkt zwar prinzipiell eine Restpopulation des direkten Leitungsbandes, diese ist jedoch in erster Näherung vernachlässigbar. Für das Valenzband ist diese Unterscheidung nicht notwendig, da sich die Lochkonzentration nicht auf mehrere Extrema des Bandes aufteilt. Wie auch im Fall der Theorie zu (GaIn)As wird über den Vergleich der Kurvenformen eine Zuordnung von theoretischen und experimentellen Spektren durchgeführt. In diesem Fall wird seitens der Theorie dabei nicht die Ladungsträgerdichte variiert, sondern der Fraktionsparameter x . Die Dichte wird passend gewählt und konstant gehalten, was durch den im Vergleich zu den Rekombinationszeiten um mehrere Größenordnungen kleineren Beobachtungszeitraum gerechtfertigt ist.

Im Teil (c) von Abb. 2.22 (oben rechts) ist das Ergebnis der Anpassung dargestellt. Neben dem linearen Absorptionsspektrum in schwarz sind Spektren für die Ladungsträgerdichte von $7,5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ und die Fraktionsparameter 0,0, 0,4, 0,7 und 1,0 dargestellt (von unten nach oben). Aus der Korrelation mit dem Experiment lässt sich eine Streuzeit vom direkten ins indirekte Leitungsband von 140 fs ableiten.

²²Dr. Martin Schäfer, AG Theoretische Halbleiterphysik, Philipps-Universität Marburg

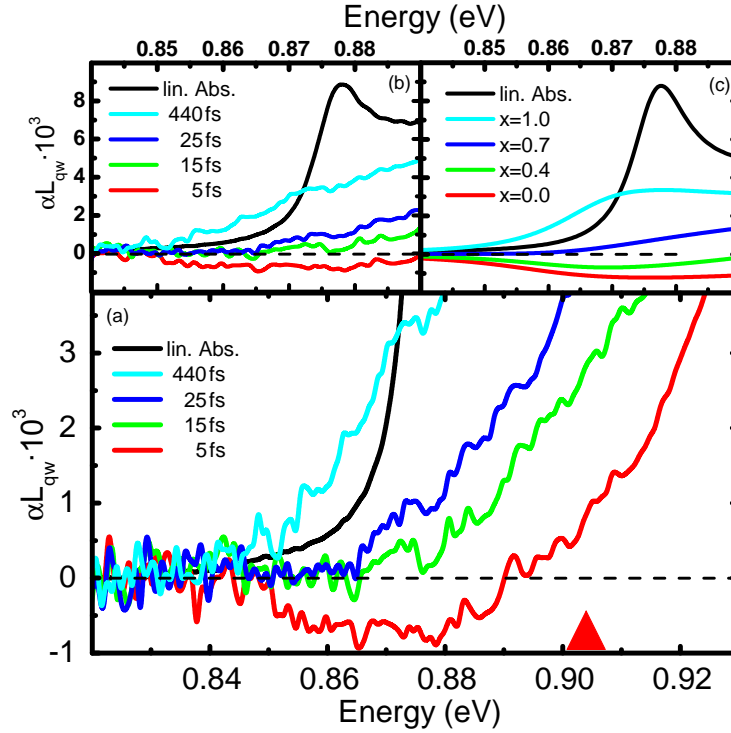


Abbildung 2.23: Experimentelle und theoretische Verstärkungsspektren wie in Abb. 2.22, jedoch mit mehr als verdoppelter Anregungsphotonendichte von $5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$. Die erhöhte Ladungsträgerdichte führt zu beschleunigter Streuung, so dass die Lebensdauer der Verstärkung nur noch etwa 30 fs beträgt und die zu den experimentellen Spektren gehörenden Zeiten 5 fs, 15 fs, 25 fs und 440 fs lauten. Die über den Vergleich mit der Theorie ermittelte charakteristische Streuzeit vom direkten ins indirekte Leitungsband beträgt 20 fs, die seitens der Theorie errechnete Ladungsträgerdichte liegt bei $1,5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$.

Eine weitere Erhöhung der Anregungsleistung auf $5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ erzielt eine Verstärkung von $\alpha L = 8 \cdot 10^{-4}$ pro Quantenfilm bei einer Verdopplung der Ladungsträgerdichte auf $1,5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. Die charakteristische Streuzeit ins indirekte Leitungsband verringert sich durch die bei hohen Dichten beschleunigte Elektron-Elektron-Streuung drastisch auf 20 fs, was die Lebensdauer der Verstärkung auf 30 fs begrenzt. Die zugehörigen Spektren sind in Abb. 2.23 dargestellt, wobei der Abbildung analog zu Abb. 2.22 aufgebaut ist. Die Zeiten der experimentellen Spektren betragen in diesem Fall 5 fs, 15 fs, 25 fs und 440 fs (von unten, rot, nach oben, türkis).

2.3.5 Verstärkung im Quasigleichgewicht

Durch die kurzen Anregungsimpulse und das damit verbundene Pauliblockieren an der Absorptionsenergie ist eine obere Grenze für die Ladungsträgerdichte gegeben, die im Elektronensystem erzeugt werden kann. Da für die bisher nur am Rande diskutierten Langzeiteffekte bei Germanium die hohe Zeitauflösung des Systems nicht nötig ist, wurde mittels zweier Gitter ein Gitterkompressor aufgebaut, der die zeitliche Dauer des Anregungsimpulses auf beliebige Werte erhöhen kann. Diese Modifikation erlaubt es, das Pauliblockieren zu vermeiden und deutlich mehr Ladungsträger zu generieren. Aus Konsistenzgründen wird die in der Literatur übliche Bezeichnung *Kompressor* beibehalten, auch wenn im vorliegenden Fall die ebenso erreichbare umgekehrte Funktionalität genutzt wird.

Das Prinzip des Gitterkompressors folgt dem eines Prismenkompressors. Zunächst wird der Laserimpuls an einem der beiden Gitter spektral aufgespalten. Die einzelnen Komponenten durchlaufen dann verschieden lange Wegstrecken, bis sie auf das zweite Gitter treffen, wo sie wieder kollimiert werden. Ein Spiegel reflektiert den Impuls, so dass er die gleiche Strecke in umgekehrter Reihenfolge wieder zurück läuft, und schließlich wieder als kollimierter Laserstrahl für das Experiment genutzt werden kann. Die Streckung ist folglich nicht durch eine Skalierung der Zeit darstellbar, sondern erhöht den zeitlichen Chirp des Impulses drastisch. Bei hinreichend großen Impulsdauern spielt die genaue Form des Impulses für das Experiment nur eine untergeordnete Rolle, da die Ladungsträgerstreuung schnell genug abläuft, um die Besetzungsdichte im Injektionsbereich gering zu halten. Durch die gaußförmige spektrale und zeitliche Form des Laserimpulses wird im gestreckten Impuls wieder eine zeitlich gaußförmige Intensitätsverteilung erreicht. Für das Experiment wurde der Gitterkompressor so konfiguriert, dass sich die zeitliche Ausdehnung etwa um den Faktor 10^3 auf 80 ps erhöhte.

In Abb. 2.24 sind zu verschiedenen Zeiten aufgenommene Absorptionsspektren dargestellt, die sich bei einer Anregungsenergie von 0,976 eV (1270 nm) und einer im Vergleich zur Kurzimpulsanregung niedrigeren Photonendichte von $9 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$ ergeben. Zur Verdeutlichung wurde die Dynamik in den Auf- (links) und Abbau (rechts) der Ladungsträgerdichte unterteilt. Der Aufbau geschieht zwischen 0 ps und 70 ps, wo der Anregungsimpuls die höchste Leistung aufweist. Die Absorption wird zunächst leicht ausgebleicht, was man an der linearen Absorptionskurve in schwarz und an den beiden von der Form her ähnlichen, direkt darunter liegenden Kurven in bläulichem Ton erkennt. Nach der Hälfte der Zeit (violette bis rote Kurven) findet jedoch ein drastischer Anstieg der Absorption über den gesamten beobachteten Spektralbereich statt, der sich auch bis unter die direkte Bandlücke fortsetzt. Die bei 70 ps erreichte Stärke der Absorption ist bei 0,869 eV etwa drei

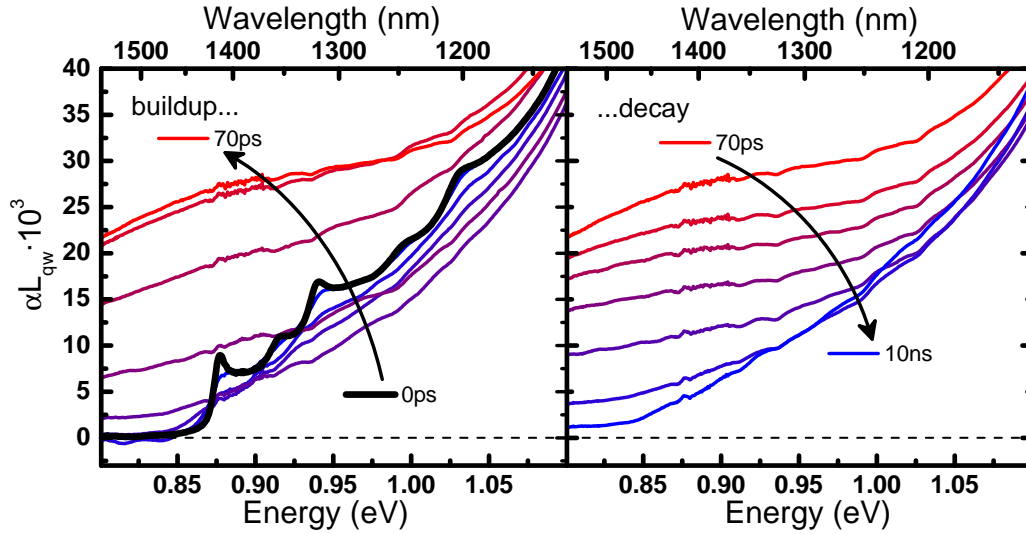


Abbildung 2.24: Absorptionsdynamik der Germaniumquantenfilme bei langen Anregungsimpulsen. Die Photonendichte von $9 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$ bei $0,976 \text{ eV}$ (1270 nm) liegt unter der der Kurzimpulsanregung. Links ist der Aufbau der Absorption (0 ps bis 70 ps) gezeigt, rechts der Abbau (70 ps bis 10 ns). Durch den stark verminderten Effekt der Pauliblockierung werden deutlich mehr Ladungsträger erzeugt und der bereits bei kurzen Anregungsimpulsen beobachtete Mechanismus der Absorption durch freie Ladungsträger kommt viel stärker zum Tragen. Die Absorption wird kurz nach der Zeitnull leicht gebleicht, erhöht sich dann aber auf Werte, die bis zu drei mal so hoch sind wie die des in schwarz dargestellten linearen Absorptionsspektrums. Auch unter der direkten Bandlücke steigt die Absorption stark an.

mal so hoch wie die des linearen Absorptionsspektrums. Sämtliche spektralen Merkmale der direkten Übergänge des Quantenfilms verschwinden, zurück bleibt eine auf den Energieskalen der Resonanzen glatte Absorption.

Die Absorptionsdynamik, die sich grundlegend von der bei der Kurzimpulsanregung beobachteten unterscheidet, kann durch den bereits diskutierten Mechanismus der Absorption freier Ladungsträger aus dem indirekten Leitungsband in höhere Zustände erklärt werden. Durch die im Vergleich zur Anregung mit 80 fs Impulsen drastisch erhöhte Ladungsträgerdichte tritt der Effekt hier viel stärker in Erscheinung. Das indirekte Leitungsband wird deutlich stärker besetzt, wodurch der Phasenraumfaktor für die Absorption in höhere Zustände stark ansteigt.

In Abb. 2.25 sind Transienten der differentiellen Absorption bei einer definierten Energie unterhalb der direkten Bandlücke für verschiedene Temperaturen aufgetragen. Die Energie wurde wegen der mit der Temperatur variierenden Bandlücke jeweils angepasst. Auch die Photonenenergie der Anregung wurde entsprechend angepasst, um bei allen Messungen in das Kontinuum des hh2-e2-Übergangs und somit stets bei gleicher Höhe der Absorption anzuregen. Durch die unterhalb der direkten Bandlücke gewählte Energie ist gewährleistet, dass der Prozess unverfälscht, i.e., ohne Absorptionsbeiträge aus den direkten Übergängen des Quantenfilms, beobachtet wird.

Mit steigender Temperatur ergibt sich eine deutliche Zunahme der differentiellen Absorption. Ein Vergleich der Signalstärke lässt sich am besten kurz nach der Anregung bei 100 ps Zeitverzögerung durchführen, da hier die ebenfalls tempera-

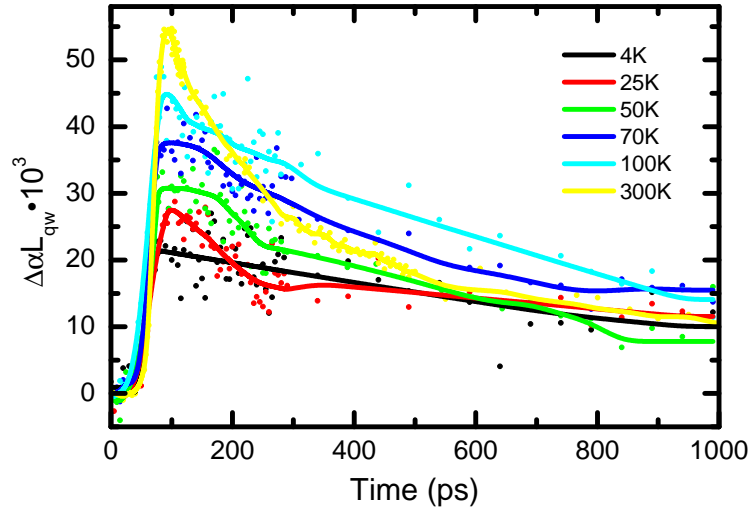


Abbildung 2.25: Transienten der differentiellen Absorption bei einer definierten Energie unterhalb der direkten Bandlücke für verschiedene Temperaturen. Das Experiment dient der Klärung der Ursache des zusätzlichen Absorptionskanals in der Probe. Um vergleichbare Bedingungen zu gewährleisten, wurde für jede Temperatur die Anregungsphotonendichte und -energie angepasst, um jeweils eine vergleichbare Dichte von Ladungsträgern zu erzeugen. Man erkennt eine starke Zunahme der differentiellen Absorption mit der Temperatur, die auf einen phononenassistierten Prozess hindeutet. Kurz nach der Anregung bei 100 ps reduziert sich die Signalstärke bei 4 K auf etwa die Hälfte des bei 300 K ermittelten Wertes, da fast alle Phononen ausgefroren sind und im Wesentlichen nur noch die Emission von Phononen möglich ist.

turabhängige Rekombinationsdynamik noch keinen nennenswerten Einfluss hat. Die Signalstärke der Tieftemperaturmessung bei 4 K ist an diesem Punkt nur halb so groß wie bei 300 K, was darauf hindeutet, dass ein phononenassistierter Prozess vorliegt. Das Signal verschwindet auch bei weitgehend ausgefrorenem Phononensystem nicht vollständig, da weiterhin Absorptionsprozesse unter Emission eines Phonons möglich sind. Die im Detail ablaufenden mehrstufigen Prozesse in diesem Materialsystem werden an dieser Stelle abschließend nochmals zusammengefasst, um einen kompakten Überblick der Absorptionsproblematik zu geben.

In Abb. 2.26 sind zwei mögliche Mechanismen für die Absorption freier Ladungsträger dargestellt. Zunächst werden die Ladungsträger aus dem Valenzband in das direkte Leitungsband angeregt, wie es in beiden Graphiken durch die blauen Pfeile dargestellt ist. Die schnelle Relaxation in das indirekte Leitungsband wird durch die roten Pfeile symbolisiert, wobei die Beteiligung von Phononen durch die wellige Form angedeutet ist. Ausgehend von dieser Situation ergeben sich zwei mögliche Folgenzenarien.

Auf der einen Seite werden die Ladungsträger aus dem indirekten Leitungsband bei einer Anregung von beispielsweise 1 eV Photonenenergie mit einer hohen Überschussenergie relativ zur Bandkante der Barriere angeregt. Die Zielzustände sind energetisch weit von den Quantenfilm- und Barrierenzuständen entfernt und nehmen daher in gewissem Maße den Charakter der Volumenzustände des Materials an, was in diesem Fall im Wesentlichen durch die Bandstruktur von Germanium bestimmt wird. Es ist daher legitim, die phononenassistierten Prozesse anhand der links abgebildeten Bandstruktur für Volumenmaterial aus Germanium zu erläutern. Da sich energetisch oberhalb des indirekten Bandes in der Nähe des L-Punkts keine Zustände befinden, die mit der Energie der Anregungsphotonen überbrückbar wären, kann hier nur der phononenassistierte Prozess zur Erklärung herangezogen werden. Die beiden blauen Pfeile deuten einen möglichen Absorptionsvorgang an, bei dem ein Elektron in der Nähe des L-Punktes um etwa 1 eV angehoben wird, und mit dem durch den geschlängelten Pfeil dargestellten Phonon in seinen Zielzustand - hier bei hoher Energie im direkten Leitungsband - gebracht wird. Der Prozess steht symbolisch für die Vielfalt an möglichen Absorptionskanälen, die in der zweidimensionalen Projektion der Bandstruktur nur exemplarisch dargestellt werden können.

Auf der anderen Seite steht die ebenso mögliche Absorption in Kontinuumszustände der Barriere bzw. des Übergitters, wie sie auf der rechten Seite von Abb. 2.26 dargestellt ist. Anhand des Bandschemas mit den betroffenen Zuständen sind die drei wesentlichen Prozesse durch Pfeile dargestellt. Die Abbildung zeigt die räumliche Struktur der direkten Bandkanten am Γ -Punkt (durchgezogene schwarze Linien) in Wachstumsrichtung für Quantenfilm und Barriere sowie die Energien der

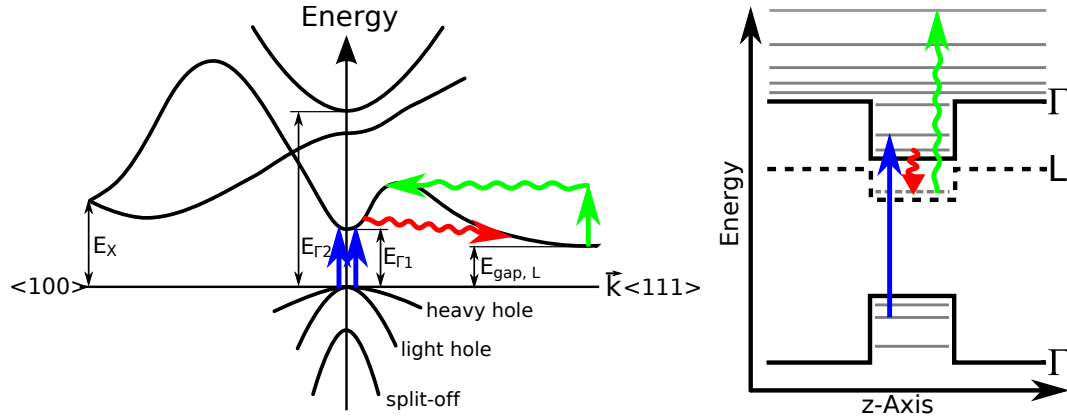


Abbildung 2.26: Mögliche Mechanismen zur Absorption freier Ladungsträger. Mit der Anregung werden zunächst im direkten Leitungsband Ladungsträger erzeugt (blaue Pfeile), die auf einer Zeitskala von 100 fs über phononenassistierte Prozesse in das indirekte Leitungsband streuen (rote Pfeile). Von hier aus sind zwei mögliche Folgeprozesse denkbar, durch die unter anderem weitere Photonen des Anregungsimpulses absorbiert werden können. **Links:** Die Anregungsphotonen heben die Elektronen aus dem indirekten Band in Zustände, die eine hohe Überschussenergie gegenüber den Bandkanten von Quantenfilm und auch Barriere aufweisen. Die Struktur der elektronischen Zustände wird in diesem Bereich im Wesentlichen durch den Charakter eines Volumenmaterials aus Quantenfilm und Barriere dominiert, was die Heranziehung der Volumenbandstruktur von Germanium rechtfertigt. Der in grün dargestellte, phononenassistierte Prozess steht stellvertretend für die große Vielfalt an denkbaren Absorptionsprozessen. **Rechts:** Anhand des räumlichen Bandkantenverlaufs von Quantenfilm und Barriere (schwarz) und den für $\vec{k} = 0$ eingezeichneten Zuständen (grau) wird deutlich, wie Elektronen aus dem indirekten Band (schwarz, gestrichelt) mit und ohne Phononenbeteiligung (grüner Pfeil) in Zustände der Barrieren bzw. des Übergitters (graue Linien oberhalb) angeregt werden.

zugehörigen Zustände in der Zonenmitte (graue Linien). Energetisch oberhalb der Quantenfilmzustände bilden sich im Kontinuum Mischzustände aus Quantenfilm- und Barrierenzuständen aus, die durch die durchgehenden, dichten grauen Linien angedeutet sind. Die Merkmale des indirekten Leitungsbandes sind in gleicher Weise mit gestrichelten Linien dargestellt. Die mit und ohne Phononenbeteiligung mögliche Absorption aus dem indirekten Band ist analog zum ersten Fall durch den grünen Pfeil dargestellt.

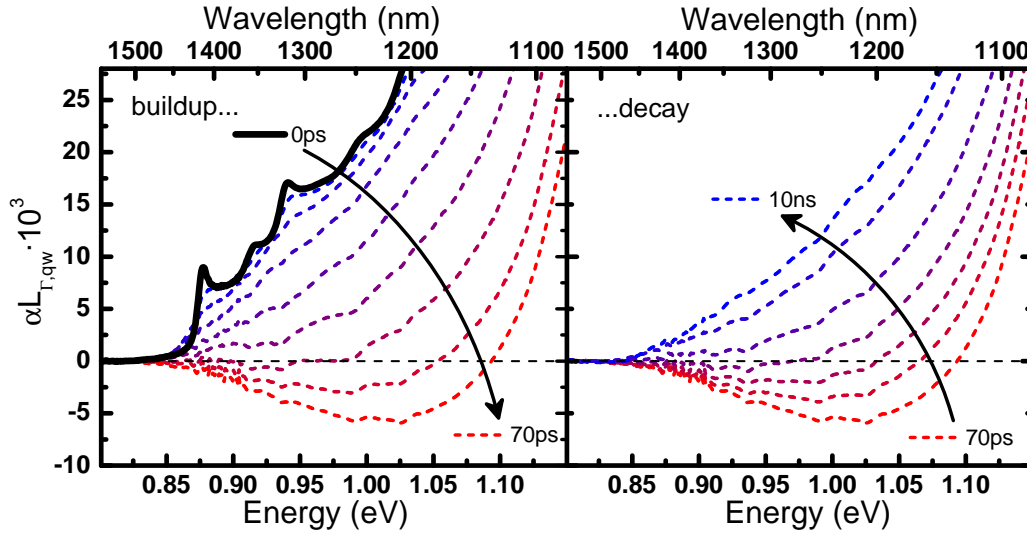


Abbildung 2.27: *Extrapolation der Absorptionsdynamik im direkten Leitungsband (Probe 8009). Unter der Annahme, dass die Absorption von Ladungsträgern im indirekten Leitungsband eine spektral flache Charakteristik aufweist, wie es unterhalb der direkten Bandlücke des Materials bestätigt wird, wurde von den in Abb. 2.24 dargestellten Spektren jeweils eine Gerade abgezogen. Die Gerade wurde so gewählt, dass die Absorption unterhalb der direkten Bandlücke verschwindet. Damit erhält man eine Abschätzung des Absorptionsbeitrages der direkten optischen Übergänge im zentralen Bereich der Brillouinzone. Die resultierenden Spektren, hier wieder separat für den Auf- und Abbau der Absorption aufgetragen, weisen typische Merkmale eines Verstärkungsspektrums eines direkten Halbleiters auf. Die Extrapolation ist jedoch über einen weiten Bereich durchgeführt und darf dementsprechend nur als grobe Abschätzung verstanden werden.*

In beiden Fällen scheint die Absorption spektral über den ganzen Bereich weitgehend flach und ohne ausgeprägte Resonanzen zu verlaufen. Im Fall von Kontinuumszuständen der Barriere bzw. des Übergitters ist die flache Struktur dieser Zielzustände theoretisch und experimentell untersucht worden [Sir92, Ger93]. Unterhalb der direkten Bandlücke, wo keine Absorptionsbeiträge durch die direkten Übergänge vom Valenz- ins Leitungsband vorliegen, bestätigt das Experiment den flachen Verlauf der Absorption durch freie Ladungsträger. Unter der Annahme, dass diese Charakteristik auch oberhalb der direkten Bandlücke vorliegt, kann die Absorption der direkten Übergänge durch eine Abschätzung isoliert werden.

In Abb. 2.27 sind die bereits diskutierten Absorptionsspektren dargestellt, wobei hier der Bereich unter der direkten Bandlücke des Quantenfilms benutzt wurde,

um einen linearen Absorptionsbeitrag zu ermitteln und von den Spektren zu subtrahieren. Der Bereich hat eine energetische Breite von etwa 100 meV, so dass die Abschätzung über eine Extrapolation der ermittelten Geraden durchgeführt wurde. Das hypothetische Verstärkungsspektrum weist typische Merkmale eines Verstärkungsspektrums auf, wie es sich beispielsweise in (GaIn)As-Quantenfilmen bei einer starken Inversion ergibt, bei der mehrere Übergänge zur stimulierten Emission beitragen. Das bei der auf (GaIn)As basierenden Probe gewonnene Spektrum (Abb. 2.6) demonstriert, dass die in der linearen Absorption erkennbaren spektralen Merkmale nicht mehr im Verstärkungsspektrum vorhanden sind, da unter anderem die exzitonischen Resonanzen vollständig ausgebleicht werden.

Es fällt auf, dass die suggerierte Verstärkung über die Injektionsenergie hinausreicht. Dies wird durch den sekundären Absorptions- und anschließenden Relaxationsprozess oder durch die Streuung ins indirekte Leitungsband ermöglicht, was in beiden Fällen Elektronen in entsprechende Zustände befördert. Wie bei der Anregung mit kurzen Impulsen ist die Ladungsträgerverteilung auch in diesem Fall stark asymmetrisch, so dass bereits eine kleine Elektronendichte im direkten Leitungsband zusammen mit der äußerst starken Besetzung des Valenzbandes genügt, um Verstärkung hervorzurufen.

Könnte der sekundäre Absorptionsprozess durch eine weitere Verfeinerung der Struktur ausgeschaltet werden, so wäre die durch die direkten Zustände erzielte Verstärkung vergleichbar hoch wie die in III-V-Halbleitern erreichte. Die Bandbreite würde dort typischerweise ermittelte Werte sogar noch übersteigen. Um den möglichen Einfluss von Barrierenzuständen auszuschließen, würde es genügen, eine Struktur aus volumenartigem Material zu fertigen. Bei einer Dicke von mehreren 100 nm würde zwar durch die fehlende Quantisierung die Quantenfilmeigenschaft verloren gehen, der Einfluss der in diesem Fall weit entfernten Barrieren würde jedoch weit zurückgehen und die Absorption in Kontinuumszustände ausbleiben. Im Fall der Absorption durch Volumenzustände von Germanium müsste ein anderer Ansatz gewählt werden. Durch eine Nanostrukturierung ähnlich zu Metamaterialien [Smi04] ergäbe sich ein ganzes Spektrum neuer Zustände, die durch die Struktur und nicht durch das Material bestimmt würden [Wol99]. Es ist denkbar, dass über einen solchen Ansatz ein Lasermaterial designt werden könnte. Im Fall von Siliziumnanostrukturen [Pav00] wurde bereits Verstärkung nachgewiesen.

2.4 Zusammenfassung

Mit der in diesem Kapitel vorgestellten Methode zur Messung der Absorptionsdynamik konnten qualitativ neue Einblicke in die optischen Eigenschaften verschiedener Halbleitermaterialien gewonnen werden. Der Aufbau erzielt eine Zeitauflösung von unter 100 fs und erlaubt durch den Einsatz des Verstärkerlasersystems das Studium von elektronischen Prozessen in extremen Dichtebereichen. Durch die spektral äußerst breitbandige Abfragemethode können schnelle Umverteilungsprozesse im Ladungsträgersystem in einer einzelnen Messung ermittelt werden, wie sie mit einer monochromen Abfragetechnik aus Gründen der Konsistenz des Zeitnullpunkts nicht zugänglich sind.

Im Speziellen wurden zunächst Experimente an Quantenfilmen des seit einiger Zeit etablierten Materialsystems (GaIn)As und des verwandten Halbleiters (GaIn)(NAs), der zu der Klasse der verdünnten Nitride gezählt wird, vorgestellt. Bei beiden Materialien wurde die Dynamik der optischen Verstärkung untersucht und im Fall von (GaIn)As mit Rechnungen einer mikroskopischen Theorie verglichen. Die sehr gute Korrelierbarkeit zeigt, dass sowohl Experiment als auch Theorie verlässliche, robuste Ergebnisse auf hohem Niveau liefern, die in der Kombination ein leistungsstarkes Analysewerkzeug zu den optischen Eigenschaften von Halbleitern zur Verfügung stellen. Mittels der für dieses Experiment speziell präparierten (GaIn)As-Probe konnte die Ladungsträgerdynamik auf Zeitskalen von 100 fs untersucht werden. In diesem Zusammenhang kam die hohe zeitlich-spektrale Konsistenz der Methode zum Tragen, die es erlaubte, die transiente Dynamik der Intra- und Intersubbandstreuprozesse im Valenzband des Materials aufzulösen.

Eine deutlich komplexere Situation wurde bei der Germaniumquantenfilmprobe analysiert. Die Ultrakurzzeitmessungen erlaubten es, verschiedene, ineinander greifende Streumechanismen voneinander zu trennen, die wiederum durch die unterschiedliche Kopplung der Spinsubsysteme im Valenzband zustande kommen. Messungen bei verschiedenen Temperaturen gaben Aufschluss darüber, welche Rolle das Phononensystem für die Ladungsträgerdynamik einnimmt.

Trotz der indirekten Natur der fundamentalen Bandlücke von Germanium, die in einer Gleichgewichtssituation eine Besetzungsinversion am Γ -Punkt unterbindet, wurde bei der Probe in Ultrakurzzeitmessungen Verstärkung nachgewiesen. Auch in diesem Fall konnten durch den Vergleich der experimentellen Spektren mit denen der mikroskopischen Theorie, die im Hinblick auf die spezielle Struktur des Leitungsbandes angepasst wurde, detailreiche Erkenntnisse zur Ladungsträgerdynamik gewonnen werden. Im Folgeexperiment mit drastisch erhöhter Ladungsträgerdichte konnte der phononenassistierte Mechanismus der Absorption

freier Ladungsträger untersucht werden, der zum einen die Verstärkung im Quasigleichgewicht unterbindet, zum anderen aber Ansätze motiviert, wie das Material durch weitere, strukturelle Optimierungen verändert werden müsste.

Die Untersuchung der transienten Ladungsträgerdynamik ermöglichte einen neuen Einblick in die Eigenschaften von Germanium, einem bereits ausgiebig charakterisierten Material mit höchst interessanten optischen Eigenschaften.

3 Verstärkungsspektroskopie nach der Strichlängenmethode

3.1 Methodik

Die Strichlängenmethode zur Bestimmung der modalen optischen Verstärkung geht auf eine Veröffentlichung von K. L. Shaklee and R.F. Leheny zurück, in der sie erstmals beschrieben wurde [Sha71]. Der Aufwand für die Durchführung des Experiments lässt sich auch in Bezug auf die Kosten für die Ausstattung auf ein Minimum begrenzen. Die technische Umsetzung lässt aber durchaus Spielraum für Erweiterungen und Verfeinerungen, die das Anwendungsspektrum ausweiten und die Qualität der Messergebnisse verbessern.

Die Bestimmung der modalen optischen Verstärkung eines Materials wird über die exponentielle Abhängigkeit der Lichtintensität von der durchlaufenen Wegstrecke durchgeführt. Dabei wird die Probe entlang eines länglichen (strichförmigen) Gebiets, welches an einer der kurzen Seiten stets bis zum Rand der Probe reicht und in der Länge variabel ist, angeregt. Die entstehende spontane Emission wird unter anderem auch in Richtung des Striches emittiert und erfährt dabei eine Abschwächung oder Verstärkung gemäß des Bouguer-Lambert'schen Gesetzes. Mittels einer geeigneten Optik wird die Emission aus der Probe seitlich aufgenommen und auf einen Detektor abgebildet. Über eine Variation der Länge des Striches lässt sich die integrierte Emission $I(l)$ einsammeln, die wiederum eine exponentielle Abhängigkeit von der Strichlänge l aufweist:

$$I(l) = \frac{A}{g_{mod}l} \cdot (\exp(g_{mod}l) - 1). \quad (3.1)$$

Der Vorfaktor A unterliegt einer Vielzahl von Einflüssen, die einerseits physikalischer Natur sind, wie beispielsweise die materialspezifische Charakteristik der spontanen Emission und die Lebensdauer der Ladungsträger, andererseits aber auch durch die Geometrie und Effizienz der Detektion vorgegeben sind. Für die Berechnung der modalen Verstärkung g_{mod} ist er jedoch irrelevant. Die Herleitung

von Gl. 3.1 erfolgt durch die Integration der von jedem Raumpunkt entlang des Strichs emittierten und auf dem Weg zur Facette verstärkten spontanen Emission. Abbildung 3.1 zeigt die im Rahmen dieser Arbeit konzipierte experimentelle Umsetzung der Messmethode. Als Strahlquelle dient ein frequenzverdoppelter Neodym-Yttrium-Lithium-Fluorid-Laser (Nd:YLF-Laser), welcher mittels kontrollierbarer Güteschaltung des Resonators im Impulsbetrieb arbeiten kann. Die spektral bei 2,35 eV (527 nm) zentrierten Impulse von 200 ns Dauer und zeitlich rechteckigem Intensitätsprofil werden mit einer Frequenz von 1 kHz bis 10 kHz emittiert. Dabei wird eine Durchschnittsleistung von bis zu 10 W mit einer Impulsenergie von bis zu 10 mJ erreicht.

Durch die im Vergleich zu den Zeitskalen der elektronischen Prozesse der meisten Halbleitermaterialien sehr lange Impulsdauer stellt sich bei der Anregung in einem Bruchteil der Impulsdauer bereits ein Quasigleichgewichtszustand ein. Insbesondere für alle in dieser Arbeit untersuchten Materialien bedeutet dies, dass die Anregung im Wesentlichen kontinuierlich geschieht. Die Polarisation des Strahls wird mithilfe eines $\lambda/2$ -Wellenplättchens gedreht, um die Leistung des am polarisationssensitiven Strahlteilerwürfel reflektierten Teilstrahls zu kontrollieren. Der reflektierte Anteil wird durch einen Strahlaufweiter auf ein Vielfaches seines Durchmessers vergrößert. Die rechteckige Blende erlaubt das Herausschneiden des Zentrums des Strahls, welches in Bezug auf die Intensität räumlich weitgehend homogen ist. Mittels der Zylinderlinse wird schließlich der Linienfokus in der Ebene der Probe mit einer Höhe von 20 μm erzeugt. Zwei in Richtung des Strichs bewegbare Schlitzblenden, eine davon mithilfe eines Motors verfahrbar, erlauben eine Variation der Strichlänge auf der Probe.

Die Emission der Probe aus der Facette wird mittels eines spektral selektiven Filters vom Streulicht des Anregungslasers befreit und über eine abbildende Optik auf den Eingangsschlitz des Spektrometers fokussiert, mit dem sie detektiert werden kann. Alternativ zur Verstärkungsmessung über die Strichlängenmethode kann in diesem Aufbau auch direkt die Laseraktivität einer Probe ermittelt werden. Hierzu benötigt man eine Probe mit parallel orientierten Facetten, die in diesem Fall durch den Brechungsindexkontrast zur Luft als Resonatorendspiegel dienen. Der Anregungsstrich wird so eingestellt, dass die Probe über die gesamte Länge angeregt wird. Falls die Verstärkung bei einem Durchqueren des angeregten Raumgebiets die Verluste des Resonators, i.e., insbesondere die in der Regel hohen Verluste an den Facetten, kompensiert, so ergibt sich eine Nettoverstärkung des Lichtfeldes in der Probe, und der Laserprozess setzt ein. Diese Konfiguration wird in Kapitel 4 für das auf Silizium abgeschiedene quaternäre Materialsystem Ga(NAsP) benutzt werden.

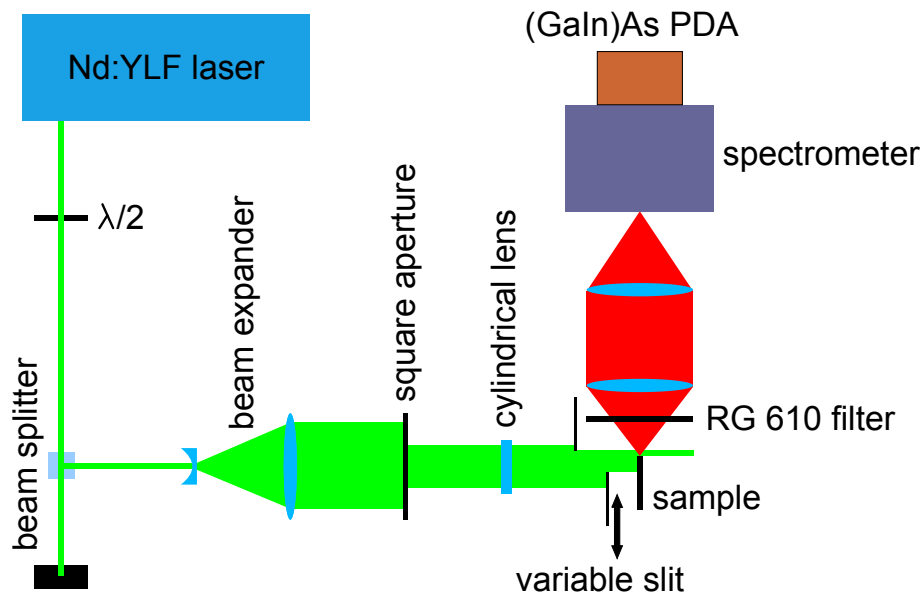


Abbildung 3.1: Schematischer Aufbau der Verstärkungsspektroskopie nach der Strichlängenmethode. Der frequenzverdoppelte Nd:YLF-Laser wird abgeschwächt, aufgeweitet, durch Ausschneiden in seiner räumlichen Intensitätsverteilung homogenisiert und schließlich als Strich variabler Länge auf die Probe fokussiert. Die Emission der Probe wird mittels eines Spektrometers mit Photodiodenzeile detektiert. Die mit 200 ns im Vergleich zu den Zeitskalen des Elektronensystems der Proben relativ langen Impulse des Lasers weisen zeitlich ein rechteckiges Intensitätsprofil auf, wodurch die Probe effektiv kontinuierlich angeregt wird. Innerhalb von typischerweise weniger als 1 ns stellt sich ein Quasigleichgewicht ein, welches somit zu mehr als 99 % der Zeit die Emissionscharakteristik der Probe bestimmt. Durch Variation der Strichlänge auf der Probe lässt sich die Intensität der verstärkten spontanen Emission als Funktion der durchlaufenen Weglänge und damit die modale Verstärkung ermitteln.

Die Strichlängenmethode ist durch den geringen Intensitätskontrast im Absorptionsbereich nur in Bereichen mit Verstärkung oder geringer Absorption zur Auswertung geeignet. Aus diesem Grund liegt in diesem Kapitel das Hauptaugenmerk auf Verstärkungsmerkmalen, und es wird in den Abbildungen das Auftragen der Verstärkung bevorzugt. In Kap. 2 wurde dagegen stets die Absorption aufgetragen.

3.2 Numerische Auswertung

Die modale Verstärkung wird üblicherweise mittels einer Anpassung von Gl. 3.1 an die experimentellen Daten [Bor06] oder durch die „l2l“-Methode [Hva78], die bei den folgenden Betrachtungen auch vorgestellt wird, bestimmt. Beide Methoden weisen keine zufriedenstellende Robustheit gegenüber Rauschen oder systematischen Fehlern in der Bestimmung der absoluten Strichlänge auf. Die l2l-Methode macht sich folgende Relation zunutze:

$$g_{mod} = \frac{1}{l} \ln \left(\frac{I(2l)}{I(l)} - 1 \right). \quad (3.2)$$

Die Wahl eines geeigneten Paares von l und $2l$ kann unter Umständen nicht möglich sein, ohne Verfälschungen durch Sättigungseffekte in Kauf nehmen zu müssen. Für ein Material mit hoher Verstärkung liegt oft die Situation vor, dass die Intensität bei einfacher Strichlänge l noch nicht signifikant aus dem Rauschen heraustritt, bei doppelter Strichlänge $2l$ aber bereits eine Sättigung vorliegt. Hierbei steigt die Intensität entlang des Striches soweit an, dass durch den Verstärkungsprozess bereits ein spürbares Absinken der Ladungsträgerdichte hervorgerufen wird und sich die Verstärkungscharakteristik deutlich von der bei einfacher Strichlänge unterscheidet. Die Annahme einer räumlich konstanten modalen Verstärkung, wie Gl. 3.2 sie erfordert, ist in diesem Fall nicht gegeben, was zu einer Unterschätzung der Verstärkung führt.

Der im Folgenden vorgestellte numerische Ansatz berücksichtigt die emittierte Intensität über einen weiten Bereich von Strichlängen, um den für die Auswertung optimalen Bereich zu ermitteln. Die Korrelation von Intensitäten bei beliebigen Strichlängen eliminiert das Sättigungsproblem auch bei Proben mit sehr hoher Verstärkung. Die Ergebnisse der folgenden Betrachtung wurden in [Lan07b] veröffentlicht. Ausgangspunkt der Betrachtung sind die Intensitäten bei zwei verschiedenen Strichlängen l und $x \cdot l$, die durch einen Faktor $x > 1$ verbunden sind. Mit der Abkürzung $z = \exp(gl)$ erhält man für das Intensitätsverhältnis r_x beider Strichlängen den Ausdruck

$$r_x := \frac{I(xl)}{I(l)} = \frac{\exp(gxl) - 1}{\exp(gl) - 1} \equiv \frac{z^x - 1}{z - 1}. \quad (3.3)$$

An diesem Punkt ist ersichtlich, dass sich für $x = 2$ die ursprüngliche Gleichung der 12l-Methode (Gl. 3.2) ergibt. Neben dieser existiert für $x = 1,5$ noch eine weitere analytische Lösung. Ausgehend von

$$r_{1,5} = g = \frac{z^{1,5} - 1}{z - 1} \quad (3.4)$$

erhält man mit der Ersetzung $y^2 = z$ die Gleichung

$$r_{1,5} = g = \frac{y^3 - 1}{y^2 - 1}, \quad (3.5)$$

die sich als Polynom dritten Grades lösen lässt. Die physikalisch sinnvolle Lösung für $y > 0$ ergibt schließlich

$$g_{mod} = \frac{2}{l} \cdot \ln \left(\frac{r_{1,5} - 1}{2} + \sqrt{\frac{(r_{1,5} - 1)^2}{4} + (r_{1,5} - 1)} \right). \quad (3.6)$$

Die allgemeine Lösung ist nur numerisch zugänglich und lässt sich auf ein Nullstellenproblem für die Funktion

$$f(z) := (z^x - 1) - r_x(z - 1) \quad (3.7)$$

zurückführen. Mittels einer Intervallhalbierungsmethode [Pre02] lässt sich das Problem mit logarithmischem Aufwand $O(\log(N))$ lösen.

Die Funktion weist die triviale Nullstelle $z = 1$ auf, welche zur Lösung $g_{mod} \cdot l = 0$ gehört und für $l > 0$ die Transparenz des Mediums bedeutet. Über die ersten beiden Ableitungen der Funktion erhält man das Minimum bei $z_{min} = (r_x/x)^{\frac{1}{x-1}}$, welches für $z_{min} \neq 1$ strikt kleiner als Null sein muss. Somit muss die Funktion eine weitere, nicht-triviale Nullstelle aufweisen. Für den Fall $z_{min} < 1$ muss die Nullstellensuche folglich im Intervall $[0, z_{min}]$ durchgeführt werden. Liegt die entartete Situation $z_{min} = 1$ vor, so verschwindet die Verstärkung gerade. Für $z_{min} > 1$ liegt die Nullstelle im Bereich $[z_{min}, \infty]$, dessen obere Grenze für praktische Zwecke über die Beziehung $z_\infty = \exp(l_{max} \cdot g_{max})$ abgeschätzt werden kann. Hierbei müssen die maximale Strichlänge l_{max} und die maximal erwartete Verstärkung g_{max} an das jeweilige Experiment angepasst werden. Für die Praxis haben sich Werte von $z_\infty = 10^{250}$ als mehr als ausreichend erwiesen. Die auf einem Standard-Bürocomputer (3,0 GHz) mit einer in C++ durchgeführten Implementierung ermittelte Rechenzeit von $10\mu\text{s}$ zur Ermittlung einer Nullstelle skaliert selbst bei den im Experiment verwendeten 512 Detektorkanälen multipliziert mit 340 ausgewerteten Strichlängen nur auf vernachlässigbare 2 s Rechenzeit. In Anlehnung

an die in der Gleichung vorkommenden Strichlängen wird die Methode im Folgenden als „lxl“-Methode bezeichnet.

Alternativ zu dieser Gleichung, bei der die absolute Länge des Strichs direkt in die Berechnung der Verstärkung einfließt, lässt sich auch lokal bei einer beliebigen Strichlänge die Ableitung der Intensität $I(l)$ benutzen. Aus

$$\frac{\partial^n}{\partial l^n} I(l) = A \cdot g_{mod}^{n-1} \exp(g_{mod} l) \quad (3.8)$$

folgt

$$g_{mod} = \frac{\frac{\partial^2}{\partial l^2} I(l)}{\frac{\partial}{\partial l} I(l)}. \quad (3.9)$$

Diese mit „ $\partial^2 \partial$ “ bezeichnete Gleichung weist keine explizite Abhängigkeit von der Strichlänge auf. In den Ableitungen kommen jeweils nur Differenzen von Intensitäten vor, so dass ein systematischer Fehler bei der Bestimmung der Strichlänge im Experiment keine Auswirkungen auf die ermittelte Verstärkung hat. Wie sich im Experiment zeigen wird, ist die Rauschanfälligkeit dieser Methode jedoch insbesondere durch die zweite Ableitung hoch.

Die Problematik lässt sich entschärfen, indem die Ableitung aus den Koeffizienten eines lokal an die experimentellen Daten angepassten Polynoms gewonnen wird. Die Ordnung des Polynoms sollte so gewählt werden, dass auf der einen Seite keine Neigung zu Überschwängern bei einzelnen Messartefakten im Spektrum entsteht, auf der anderen Seite aber auch gewährleistet ist, dass das Polynom den experimentellen Daten gut folgt. Die optimale Ordnung des Polynoms hängt vom Abstand der Messpunkte und der Charakteristik der Emission der jeweiligen Probe ab. Für die hier vorgestellten Ergebnisse wurde ein Polynom sechster Ordnung gewählt.

Die Rauschproblematik der auf Ableitungen basierenden Methodik kann weiter abgemildert werden, indem man sich auf die erste Ableitung beschränkt. Ähnlich zur lxl-Methode lässt sich die „ $\partial l \partial x l$ “-Methode formulieren, die in diesem Fall die Ableitungen bei zwei Strichlängen l und xl verwendet. Ganz analog zu Gl. 3.9 erhält man

$$g_{mod} = \frac{1}{l \cdot (x - 1)} \cdot \ln \left(\frac{\frac{\partial}{\partial l} I(xl)}{\frac{\partial}{\partial l} I(l)} \right). \quad (3.10)$$

Wie bei der lxl-Methode liegt auch hier eine explizite Abhängigkeit von der Strichlänge vor.

3.2.1 Numerische Betrachtung zur Rauschanfälligkeit

Um die Anfälligkeit der Methoden gegenüber Rauscheinflüssen zu untersuchen, eignet sich eine Betrachtung der Fehlerfortpflanzung durch die verwendeten Gleichungen. Aufgrund der nur noch umständlich analytisch handhabbaren Gleichungen, was insbesondere auf den Fall der lxl-Methode zutrifft, kommt eine numerische Analyse zum Einsatz. Die gaußverteilten Rauschquellen wurden hierbei hinsichtlich ihrer Hauptursachen kategorisiert, so dass im Folgenden zwischen Detektorrauschen, Instabilitätsrauschen der Anregungslichtquelle und Fluktuationen der Probenqualität unterschieden wird.

Für die l2l- und die lxl-Methode ($x = 1, 2$) wurde die Verstärkung eines künstlich erzeugten Datensatzes mit bekannter, vorgegebener Verstärkung berechnet und das Ergebnis mit der Vorgabe verglichen. Um eine statistische Aussage zu erhalten, wurden für jeden Verstärkungswert 100 Datensätze erzeugt und ausgewertet. Bei der Erzeugung der synthetischen Daten wurde ein Abschwächungsterm benutzt, der die Verstärkung abhängig von der bereits erreichten Stärke des Lichtfeldes in der Probe reduziert, in weitgehender Analogie zu Ref. [Neg04]. Durch diesen Term lässt sich das Sättigungsverhalten des Materials simulieren und die Empfindlichkeit der Auswertemethode unter diesem Gesichtspunkt betrachten. Für die Emission der Probe gilt die differentielle Beziehung

$$\frac{\partial I_{syn,0}(l)}{\partial z} = \frac{g_{mod} \cdot (1 + n_{\sigma_{gain}}) + A_{spont}}{\exp(\frac{I_{syn,0}(l)}{I_{sat}})}. \quad (3.11)$$

Das synthetische Intensitätsprofil $I_{syn,0}(l)$ wurde durch numerische Integration dieser Gleichung ermittelt. Der Koeffizient für die spontane Emission A_{spont} und die Sättigungsintensität I_{sat} wurden so gewählt, dass die bestmögliche Übereinstimmung mit den im Experiment gewonnenen Spektren erreicht wurde.

Um Inhomogenitäten in der Probe wiederzugeben, wurde für jeden räumlichen Integrationsschritt ein individueller Wert für die Verstärkung gewählt, der mit einer relativen Standardabweichung von $\sigma_{gain} \leq 0,2$ streut, um ein Schwanken von bis zu 20 % zu simulieren. Für die Vergleichbarkeit der Datensätze untereinander für verschiedene Strichlängen wurde, jeweils auf ein einzelnes Raumgebiet der Probe bezogen, die gleiche Abweichung vom Mittelwert gewählt, wie es auch in einer realen Probe der Fall wäre.

Die Messung der Intensitätskurve geschieht im Experiment als Folge von Einzelexperimenten mit konsekutiv erhöhten Strichlängen. Bei jedem Messschritt weist die Anregungslichtquelle eine potentiell andere Intensität auf, die sich in erster Näherung linear in der von der Probe emittierten Intensität niederschlägt. Das

Hintergrundrauschen wird allein vom Detektor bestimmt und auf das Messsignal addiert. Unter Berücksichtigung dieser Faktoren ergibt sich die modifizierte Gleichung

$$I_{syn}(l) = I_{syn,0}(l) \cdot (1 + n_{\sigma_{laser}}(l)) + |n_{\sigma_{detector}}(l)|. \quad (3.12)$$

Das Intensitätsprofil I_{syn} setzt sich aus dem über Gl. 3.11 gewonnenen Anteil $I_{sat,0}$ und den beiden Rauschquellen zusammen. Der erste Anteil $(1 + n_{\sigma_{laser}}(l))$ ergibt eine um den Faktor 1 zentrierte Gaußverteilung mit einer Standardabweichung von $\sigma_{laser} \leq 0,1$, die ein Schwanken der Intensität der Anregungslichtquelle im Rahmen von 10 % simuliert. Das Hintergrundrauschen $n_{\sigma_{detector}}(l)$ weist eine Standardabweichung entsprechend bis zu etwa 30 Zählereignissen auf und wird mittels der Betragsfunktion auf positiv semidefinite Werte beschränkt, wie sie der Detektor liefert. Die gewählte Schreibweise der Rauschterme als Funktion von l soll klarstellen, dass der Rauschterm für jede Länge des Strichs einen anderen Wert annimmt, jedoch keinesfalls eine analytische Abhängigkeit von l aufweist. Das Rauschen des Detektors ergibt einen ständig präsenten und in der Regel niedrigen Rauschhintergrund. Die Dynamik der Kamera von etwa 10^4 ist hierbei ausreichend groß, damit bei hoher Aussteuerung kein nennenswerter Einfluss des Hintergrunds vorliegt. Bei niedrigen Signalstärken, wie sie üblicherweise bei kleinen Strichlängen oder im Absorptionsbereich vorliegen, ist der Signal-Rausch-Abstand allerdings noch gering. Das Rauschen des Detektors ist daher in diesem Fall der dominante Störeinfluss. Ist die Signalstärke deutlich größer als das Detektorrauschen, dominiert der Rauscheinfluss der Anregungslichtquelle. Um den Einfluss der drei Rauschquellen getrennt zu analysieren, werden jeweils zwei der statistischen Variablen identisch Null gesetzt und die Standardabweichung der verbleibenden variiert.

In Abb. 3.2 ist die ermittelte Verstärkung als Funktion der vorgegebenen exemplarisch für verschiedenen Werte von σ_{laser} für die lxl-Methode dargestellt. Selbst bei hohen Schwankungen der Intensität des Anregungslasers ist die Unsicherheit in der ermittelten Verstärkung akzeptabel. Bei hohen Werten für die Verstärkung ist ein annähernd direkter Zusammenhang zwischen Laserrauschen und Rauschen im Ergebnis erkennbar, ersichtlich an der etwa 10 % betragenden statistischen Streuung im Ergebnis bei 10 % Instabilität des Lasers. Typischerweise erreichen moderne Halbleiter- oder Festkörperlaser Stabilitäten von deutlich besser als 1 % Intensitätsrauschen, so dass dieser Einfluss weitgehend vernachlässigt werden kann.

Der Einfluss von statistischen Variationen der Probenqualität entlang des Striches hat potentiell nur geringen Einfluss auf die ermittelte Verstärkung, wie im Folgenden demonstriert wird. Unter der Annahme, dass sich die Probe der Länge l entlang des Striches in N Bereiche der Länge Δl mit jeweils homogener

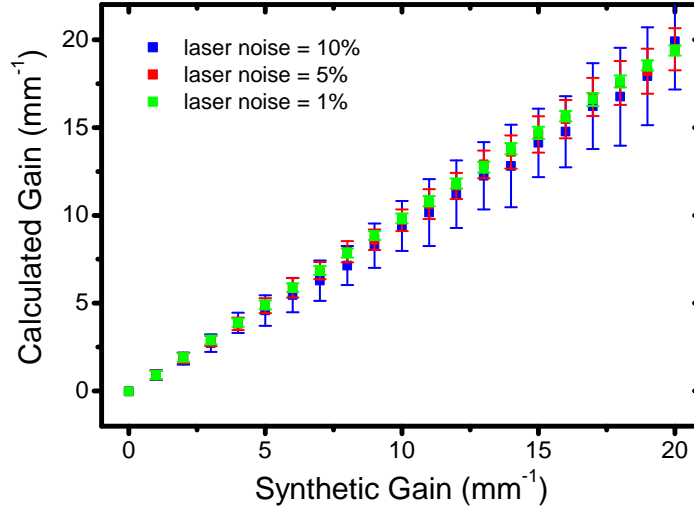


Abbildung 3.2: Einfluss von Rauschen des Lasers auf die durch die *lxl*-Methode ermittelte Verstärkung bei $x=1,2$. Zunächst wurden künstliche Spektren gemäß Gl. 3.12 mit einem Vorgabewert für die Verstärkung („Synthetic Gain“) erzeugt. Diese wurden dann mit der *lxl*-Methode ausgewertet. Je nach Intensität der einzelnen Rauschanteile ergeben sich verschieden starke Abweichungen vom Vorgabewert. In diesem Fall wurde nur das Rauschen des Lasers mit 1 %, 5 % und 10 % untersucht. Erst bei extremen Leistungsschwankungen von 10 % ergibt sich eine nennenswerte Unsicherheit im Verstärkungsspektrum.

Verstärkung g_i aufteilen lässt, ergibt sich der Gesamtverstärkungsfaktor $\exp(gl)$ über die volle Strichlänge als Produkt von exponentiellen Faktoren:

$$\exp(gl) = \prod_{i=1}^N \exp(g_i \Delta l) = \exp(\Delta l \cdot \sum_{i=1}^N g_i). \quad (3.13)$$

Setzt man voraus, dass die Abweichungen der g_i normalverteilt um ihren Mittelwert g_0 sind, so erhält man für $\Delta l \rightarrow 0$ mit $N \cdot \Delta l = l$, dass die errechnete Verstärkung von den lokalen Fluktuationen unbeeinflusst bleibt. Die Standardabweichung der Summe hängt bei statistisch unabhängigen, normalverteilten Fluktuationen der lokalen Verstärkung wie \sqrt{N} von der Anzahl der Unterteilungen ab. Der gesamte Term strebt daher durch den Faktor $\Delta l = l/N$ gegen Null, so dass man

$$\lim_{N \rightarrow \infty} \alpha = \alpha_0 \quad (3.14)$$

erhält. Die Gesamtverstärkung entlang des Striches ist in diesem Grenzfall unabhängig von der Standardabweichung σ_{gain} . Der physikalische Hintergrund dieses Ergebnisses ist, dass das Material im Grenzfall unendlich kleiner inhomogener Domänen deren gemittelte Eigenschaften annimmt. Für endliche Größen der homogenen Bereiche ergibt sich zwar keine perfekte Mittelung der Verstärkung, in der Simulation zeigt sich jedoch, dass auch bei sehr hohen Fluktuationen der Probenqualität bis zu $\sigma_{gain} = 20\%$ ein nur mäßiger Einfluss auf die ermittelte Verstärkung vorliegt.

In Abb. 3.3 ist der Zusammenhang dargestellt. Bei der für die Simulation gewählten Zellgröße von $5\mu\text{m}$ und $\sigma_{gain} = 0,2$ ergibt sich maximal eine Streuung von 15% für den errechneten Verstärkungswert, bei $\sigma_{gain} = 0,05$ liegt sie unter 2% . Für eine Zellgröße von 250nm bleibt die Streuung sogar bei $\sigma_{gain} = 20\%$ unter 3% .

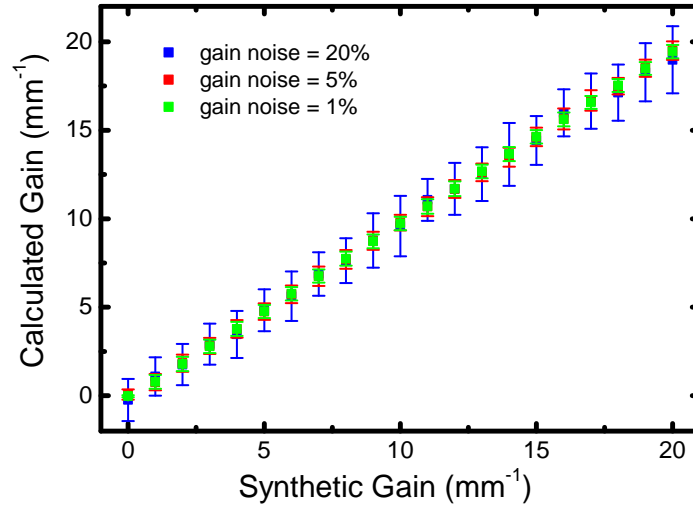


Abbildung 3.3: Ermittlung der Anfälligkeit der Auswertemethode gegen statistische Fluktuationen der Probenqualität analog zu Abb. 3.2. In diesem Fall wird die Verstärkung als entlang des Striches ortsabhängige, aber stückweise konstante Größe behandelt, die normalverteilt um g_0 fluktuiert. Man erhält analytisch, dass die resultierende Verstärkung über den gesamten Strich von den Fluktuationen unabhängig ist, wenn die Größe Δl der Bereiche konstanter Verstärkung gegen Null strebt. Für endliche Werte, hier $\Delta l = 5\mu\text{m}$, findet keine perfekte Mittelung statt. Auch bei großen lokalen Fluktuationen von 20% zeigen sich jedoch nur geringfügige Auswirkungen auf die Stabilität der Methode.

Der Einfluss des Detektorrauschens schließlich ist in Abb. 3.4 für die l2l- wie auch die lxl-Methode dargestellt. Die Standardabweichung wurde zur Angleichung an das Experiment mit $\sigma_{detector} = 20$ angesetzt. Bei kleinen Verstärkungswerten, die in der Simulation mit kleinen Signalamplituden einhergehen, dominiert der Rauschhintergrund. Erwartungsgemäß ist die Unsicherheit der mit der l2l-Methode ermittelten Verstärkungswerte geringer, da zumindest der Stützpunkt für 2l in Bereichen mit höherer absoluter Signalamplitude liegt. Für hohe Verstärkungswerte verringert sich die Unsicherheit der lxl-Methode, bis sie schließlich ein vergleichbares Niveau erreicht hat. Ab Verstärkungswerten von $g = 10 \cdot \text{mm}^{-1}$ und höher zeigt die Methode ihre Robustheit gegen Sättigungseffekte. Die ermittelte Verstärkung liegt weniger als 4 % unter dem Vorgabewert. Die konventionelle l2l-Methode zeigt hier einen deutlich sublinearen Verlauf, bei dem die Verstärkung bis zu 20 % unterschätzt wird.

Neben den vorgestellten stochastischen Fehlerquellen ergeben sich weitere, durch die Imperfektion der Messapparatur hervorgerufene Schwierigkeiten. Die Umset-

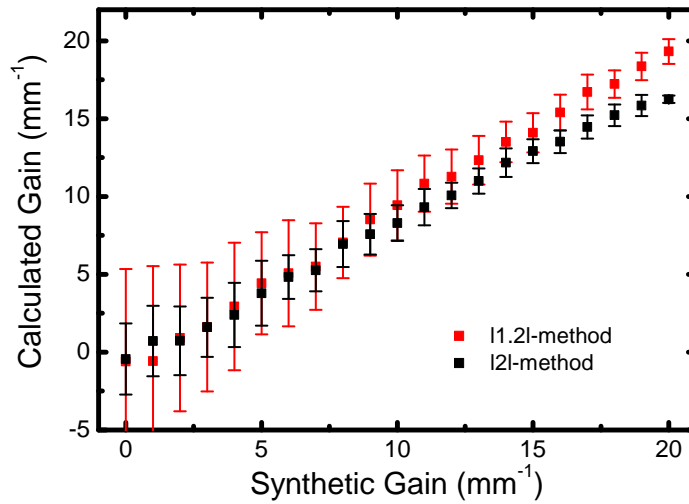


Abbildung 3.4: Einfluss des Detektorrauschens auf die mittels der lxl-Methode errechnete Verstärkung, analog zu Abb. 3.2. Die Auswertung wurde für $x=1,2$ und $x=2$ für ein typisches Verhältnis von Detektorrauschen zu Probensignal durchgeführt. Im Fall von $x=1,2$ leidet die Methode bei geringer Verstärkung stark unter der geringen Dynamik der Emission im Vergleich zum Rauschpegel. Für hohe Verstärkungswerte zeigen sich die Stärken der Methode. Der Vorgabewert wird sehr gut und mit geringem Rauschen reproduziert, ohne die bei $x=2$ deutliche Unterschätzung durch die Sättigung des Signals aufzuweisen.

zung einer homogenen Anregung der Probe entlang des Striches, wie sie stets implizit angenommen wurde, lässt einige experimentelle Hürden aufkommen. Zum einen ist das räumliche Intensitätsprofil eines Lasers meist gaußförmig, was sich unter Inkaufnahme von hohen Leistungsverlusten durch eine große Aufweitung des Strahls und dem Ausschneiden des zentralen Bereichs in gewissem Maße kompensieren lässt. Zum anderen muss die Strichlänge auf der Probe kontrollierbar sein, was üblicherweise mit einer kurz vor der Probe in den Strahl gebrachten Blende erreicht wird. Hierbei entstehen unweigerlich Beugungseffekte [Neg04], die zu einem Ausschmieren des Intensitätsprofils in Strichrichtung führen. Durch die Fresnelbeugung entsteht eine superlineare Intensitätsflanke, die bei entsprechendem Abstand der Blende zur Probe auf einer Längenskala ansteigt, auf der auch die verstärkte spontane Emission der Probe in ähnlichem Maße ansteigt. In diesem Fall ist nicht unterscheidbar, ob die Probe Verstärkung zeigt oder ob die spontane Emission der Probe mit zunehmender Strichlänge lediglich der Flanke des Anregungsintensitätsprofils folgt. In beiden Fällen ist keine verlässliche Auswertung der Verstärkung möglich. Der Effekt kann von experimenteller Seite prinzipiell nur minimiert werden, indem entweder die Blende so nah wie möglich an die Probe herangebracht wird oder der Strich mit einer abbildenden Optik auf die Probe fokussiert wird. Je nach Verstärkung des Materials kann es vorkommen, dass selbst diese Maßnahmen nicht genügen. Für diesen Fall lässt sich das Problem durch eine modifizierte Auswertemethode, die im Folgenden als difflog-Methode bezeichnet wird, umgehen.

Ausgehend von einer differentiellen Version der Grundgleichung 3.1 lässt sich mit einem Standardlösungsansatz für die Differentialgleichung eine Form gewinnen, bei der das Integral an einer Strichlänge x_0 in zwei Teile separiert ist. Die Verstärkung wird für diese Betrachtung zunächst als eine Funktion des Ortes betrachtet, um den Einfluss des inhomogenen Anregungsprofils zu unterstreichen. Man erhält:

$$\begin{aligned}
 I(l) = & \left\{ \int_0^{x_0} A(x') \exp \left[- \int_0^{x'} g(x'') dx'' \right] dx' \right. \\
 & + \left. \int_{x_0}^l A(x') \exp \left[- \int_0^{x'} g(x'') dx'' \right] dx' \right\} \\
 & \times \left[\exp \left(\int_0^{x_0} g(x') dx' \right) \exp \left(\int_{x_0}^l g(x') dx' \right) \right].
 \end{aligned} \tag{3.15}$$

Auch die spontane Emission $A(x)$ ist hier eine Funktion des Ortes. Wählt man x_0 ausreichend groß, so dass die Anregung von x_0 bis l nicht mehr durch

Beugungseffekte beeinflusst wird, so entfällt die Ortsabhängigkeit für $x > x_0$. Es folgt:

$$I_{x_0}(l) = \frac{A_0}{g} [\exp(g(l - x_0)) - 1] + I_i(x_0) \cdot \exp(g(l - x_0)). \quad (3.16)$$

Der erste Term beschreibt völlig analog zu Gl. 3.1 die verstärkte spontane Emission über den Bereich von x_0 bis l . Der zweite Term setzt sich zusammen aus dem Integral $I_i(x_0)$ und dem Verstärkungsfaktor für die verbleibende Wegstrecke. Der Wert des Integrals gibt die integrierte spontane Emission über den inhomogenen Bereich des Striches wieder, die durch die erwähnten Störeinflüsse generell nicht analytisch zugänglich ist, aber experimentell bestimmt werden kann bzw. in einer Standardmessung automatisch ermittelt wird. Eine einfache Umformung ergibt

$$\ln(\partial_l I(l)) = [\ln(A_0 + gI_i(x_0)) - gx_0] + gl. \quad (3.17)$$

Der Term in Klammern ist konstant, so dass die Verstärkung durch die Steigung der Geraden bestimmt wird. Durch die formale Aufteilung des Integrals sind nicht nur Imperfektionen in der Homogenität der Anregung tolerierbar, es liegt ferner auch keine Abhängigkeit von der absoluten Strichlänge vor, so dass ein systematischer Fehler in der Bestimmung der Strichlänge keine Auswirkungen auf das Ergebnis hat.

3.2.2 Experimenteller Vergleich der Methoden

Im Folgenden wird der Hergang der experimentellen Auswertung anhand einer Probe, die quantenpunktähnliche Strukturen enthält, demonstriert, um die Methoden untereinander zu vergleichen. Die Probe stammt aus einer Serie von Heterostrukturen auf Basis von $\text{GaAs}_{0,64}\text{Sb}_{0,36}$, die aus jeweils einen Quantenfilm von 7 nm Dicke bestehen. Der Quantenfilm ist in Barrieren aus GaAs mit variabler Dicke zwischen 0 nm und 9 nm eingebettet, wie es in der schematischen Abbildung 3.5 dargestellt ist. Durch das Einbringen von Sb in GaAs wird die Bandlücke verringert. Die energetische Bandanordnung in Wachstumsrichtung ist vom Typ II, d.h. im Leitungsband wird kein Confinement der Elektronenwellenfunktion erreicht. Aus diesem Grund ist der Stapel aus Quantenfilm und Barriere wiederum von einer 75 nm dicken Schicht aus $(\text{Al}_{0,25}\text{Ga}_{0,75})\text{As}$ umgeben. Der Leitungsbandabstand zwischen der Ga(AsSb)- und der GaAs-Schicht ist mit 40 meV [Büc07] gering, so dass die Ladungsträger sich nach einer Injektion mit hoher Überschussenergie zunächst frei bewegen können. Im Quasigleichgewicht findet eine räumliche Separation von Elektronen und Löchern statt, was zu einem verringerten Überlapp der Lochwellenfunktion mit der der unteren Leitungsbandzustände führt. Der

dominante optische Übergang des Systems findet zwischen dem obersten Lochband und dem dritten Leitungsbandzustand statt.

Bedingt durch Konzentrationsfluktuationen der Konstituenten innerhalb der Ebene des Quantenfilms, die in Abbildung 3.6 sehr anschaulich erkennbar sind, unterliegen auch die Bandabstände starken ortsabhängigen Variationen. Dies sorgt für ein zusätzliches Confinement der Löcher in der Quantenfilmebene, wodurch die elektronische Struktur einen gemischten Charakter aus Quantenpunkt- und Quantenfilmeigenschaft annimmt. Details zur elektronischen Struktur finden sich

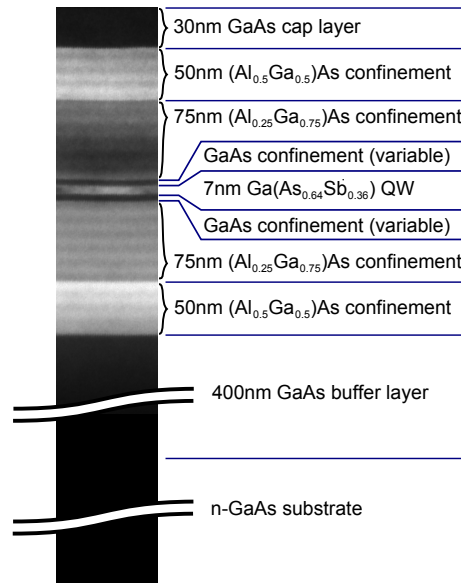


Abbildung 3.5: Schematische Darstellung der Struktur der Probe B812/9mm mit 9 nm GaAs-Confinement. Die Probe stammt aus einer Serie von Heterostrukturen auf Basis von $\text{GaAs}_{0.64}\text{Sb}_{0.36}$, die aus jeweils einen Quantenfilm von 7 nm Dicke bestehen. Der Quantenfilm ist in Barrieren aus GaAs mit variabler Dicke zwischen 0 nm und 9 nm eingebettet. Um auch im Leitungsband ein Confinement der Elektronenwellenfunktion zu erreichen, ist der Stapel aus Quantenfilm und Barriere wiederum von einer 75 nm dicke Schicht aus $\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$ umgeben. Der Leitungsbandabstand zwischen der $\text{Ga}(\text{AsSb})$ - und der GaAs-Schicht ist mit 40 meV [Büc07] gering. Im Quasigleichgewicht findet eine räumliche Separation von Elektronen und Löchern statt, was zu einem verringerten Überlapp der Lochwellenfunktion mit der der unteren Leitungsbandzustände führt. Der dominante optische Übergang des Systems findet zwischen dem obersten Lochband und dem dritten Leitungsbandzustand statt.

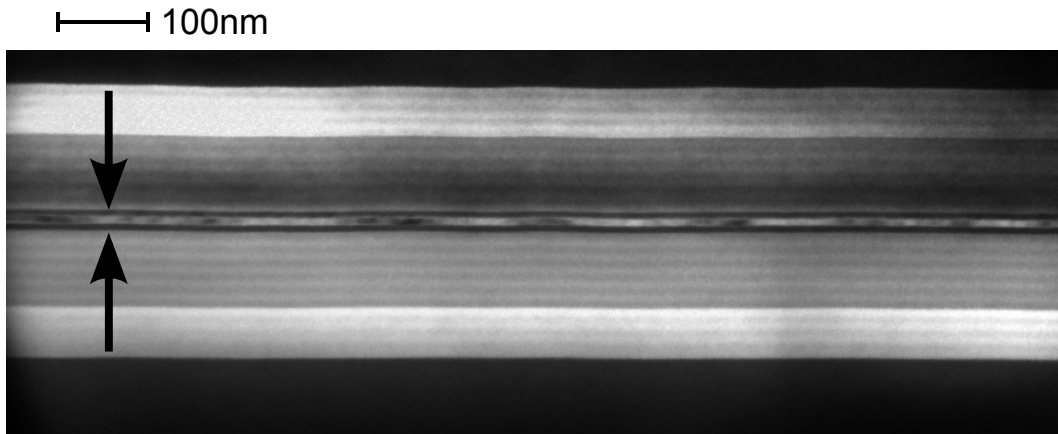


Abbildung 3.6: Transmissionselektronenmikroskopische Aufnahme der Probe B808/6mm. In der Mitte der epitaktischen Struktur ist der Quantenfilm zu erkennen, der durch die großen Fluktuationen der Sb-Konzentration eine unregelmäßige Transmission aufweist. Anhand der Skala lässt sich abschätzen, dass die Domänen ähnlicher Konzentration etwa eine Ausdehnung von 50 nm-100 nm aufweisen. Die elektronische Struktur des Materials nimmt für die Löcher aufgrund dieser Inselbildung einen Quantenpunktcharakter an.

in Ref. [Büc07]. Die Proben wurden am Center for Solid State Electronics Research and Department of Electrical Engineering der Arizona State University durch Molekularstrahlepitaxie hergestellt.

Abb. 3.7 zeigt für Probe „B812/9mm“ (9 nm Barriere) die emittierte Intensität als Funktion der Energie für eine Auswahl von Strichlängen (links). Die Anregungsleistung betrug 20 Wmm^{-2} bei einer Photonenenergie von 2,35 eV, was im Vergleich zum niedrigsten energetischen Zustand des Quantenfilms von 0,942 eV eine Überschussenergie von über 1,4 eV bedeutet.

Die Emission wird maßgeblich bestimmt durch die zwei Zustände, deren mit den Pfeilspitzen markierte Emissionsmaxima bei 0,972 eV und 1,019 eV liegen. Man erkennt ein bei etwa 0,2 mm beginnendes rasches Anwachsen der verstärkten stimulierten Emission mit zunehmender Strichlänge, dessen Steigung dann bereits bei 0,4 mm nicht mehr zunimmt. Im rechten Teil der Abbildung ist die Emission als Funktion der Strichlänge für die beiden Zustände aufgetragen. Durch die logarithmische Auftragung wird deutlich, in welchem Bereich ein exponentielles Anwachsen der Intensität vorliegt. Die Auswertung der Verstärkung muss innerhalb dieses Fensters erfolgen, wobei keine der für die Berechnung erforderlichen Strichlängen außerhalb liegen sollte. Für größere Strichlängen oberhalb dieses Bereichs nimmt

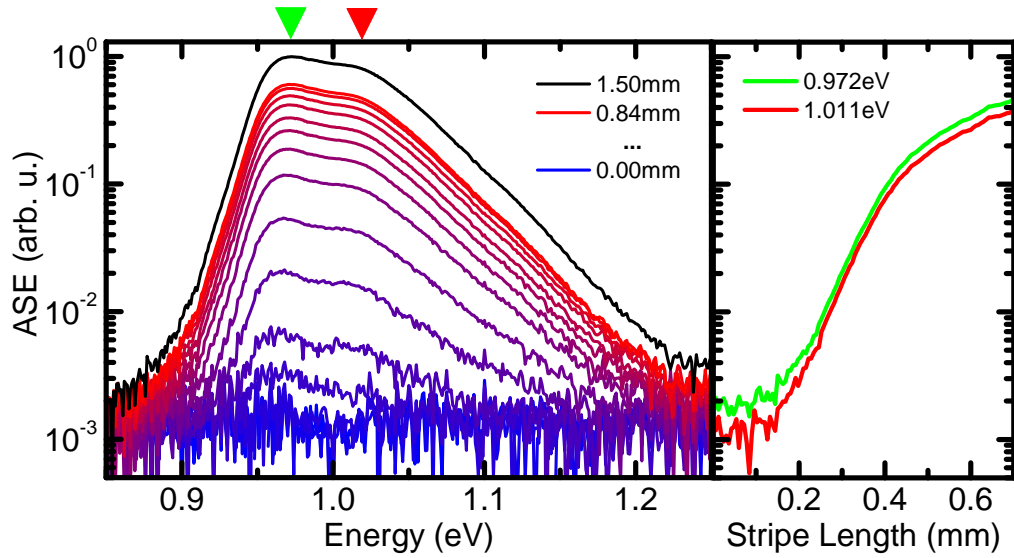


Abbildung 3.7: Emissionsspektren der Probe B812/9mm. Die Abbildung links zeigt die Intensität der verstärkten spontanen Emission als Funktion der Energie für eine Auswahl an Strichlängen. In der Abbildung rechts ist für die beiden mit den Pfeilspitzen markierten Zustände jeweils die Intensität als Funktion der Strichlänge aufgetragen. Ab einer Strichlänge von 0,2 mm setzt ein rasches Anwachsen der Intensität ein, welches sich bis 0,4 mm exponentiell fortsetzt. Oberhalb von 0,4 mm erfährt die Intensität eine weitgehende Sättigung, so dass die Auswertung in diesem Fall in dem Fenster von 0,2 mm bis 0,4 mm erfolgen muss.

die Steigung durch den fortschreitenden Einfluss des Sättigungseffekts weiter ab, was, wie bereits eingangs erwähnt, zu einer Unterschätzung der Verstärkung führt.

Die Auswirkungen auf die Auswertung werden in Abb. 3.8 deutlich, wo an drei energetischen Positionen die über die lxl-Methode ermittelte Verstärkung als Funktion des Auswertefensters, i.e., als Funktion der unteren Strichlänge l , dargestellt ist. Die Auswertung wurde exemplarisch für zwei verschiedene Werte von x durchgeführt, um auch anhand von experimentellen Daten das Sättigungsproblem zu erläutern.

Beim Betrachten der zu $x = 1,2$ gehörigen Kurven erkennt man, dass der Wert für die Verstärkung zunächst mit steigender Strichlänge stark ansteigt. In diesem Bereich, der sich von 0 mm bis in diesem Fall etwa 0,2 mm erstreckt, steigt die Intensität der Emission schnell an und hebt sich schließlich aus dem Rauschen heraus.

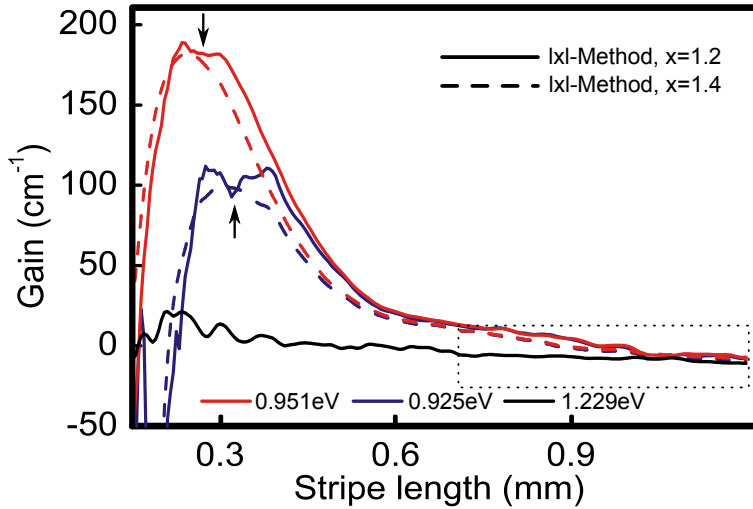


Abbildung 3.8: Einfluss der Wahl des Auswertefensters auf die ermittelte Verstärkung für die Probe B812/9mm. Für die Energien 0,951 eV, 0,925 eV und 1,229 eV ist die ermittelte Verstärkung als Funktion des unteren Auswertepunkts gezeigt. Die beiden niederenergetischen Kurven lassen die drei relevanten Bereiche von Strichlängen erkennen: Zunächst überwiegt das Detektorrauschen, die Verstärkung wird unterschätzt. Mit stärker werdendem Signal steigt die ermittelte Verstärkung an, bis sie ein Maximum ($x = 1,4$) bzw. ein Plateau ($x = 1,2$) erreicht. Im darauffolgenden Bereich oberhalb von etwa 0,4 mm wird der Wert durch Sättigungseffekte unterschätzt. Das im Fall $x = 1,2$ ausgebildete Plateau zeigt, dass ein Bereich von Strichlängen existiert, in dem weder Rausch- noch Sättigungseffekte vorliegen. Für 1,229 eV liegt Absorption vor. In diesem Fall konvergiert der Wert mit steigender Strichlänge, so dass die Auswertung bei großen Strichlängen erfolgen muss.

Im Anschluss folgt der für die Auswertung brauchbare Bereich, wo sich das Verstärkungsmaximum ausbildet. Im vorliegenden Fall entsteht ein Plateau mit konstanter Verstärkung von etwa 0,1 mm Breite, wie es jeweils durch einen schwarzen Pfeil markiert ist. In diesem Bereich folgt die Emission der Probe der im Wesentlichen exponentiellen Form von Gl. 3.1 in sehr guter Näherung.

Nach dem Plateau fällt das Signal kontinuierlich ab, da die Intensität der Emission zunehmend in die Sättigung übergeht. Für $x = 1,4$ ergibt sich prinzipiell der gleiche Verlauf. Es bildet sich jedoch kein Plateau aus, da das um den Faktor 1,4 getrennte Paar von Stützstellen zu weit auseinanderliegt und somit die bereits beschriebene Sättigungsproblematik eintritt. Hieraus resultiert die leichte Unterschätzung des Verstärkungswertes im Vergleich zu $x = 1,2$ von etwa 5 %. Je

nach Photonenenergie ergibt sich, wie hier ersichtlich, ein anderer Bereich von Strichlängen, in dem die Auswertung korrekte Ergebnisse liefert. Es ist daher zwingend erforderlich, dass für jede energetische Position die optimale Strichlänge nach den obengenannten Kriterien separat bestimmt wird. Wird die Auswertung stets für die gleiche Strichlänge durchgeführt, so ist damit zu rechnen, dass das errechnete Verstärkungsspektrum einen wellenlängenabhängigen Fehler enthält. Die modale Verstärkung ist dann nicht mehr proportional zur tatsächlichen Verstärkung, sondern weicht auch in ihrer Linienform von dieser ab.

Die schwarz dargestellte Kurve für 1,229 eV zeigt den typischen Verlauf für das Vorliegen von Absorption. Da in diesem Fall keine Sättigung zu erwarten ist, stimmt die Emission der Probe auch für große Strichlängen noch gut mit der über Gl. 3.1 errechneten überein, bei der sich für negative Werte von g_{mod} eine exponentielle Konvergenz mit dem Grenzwert $-A/g_{mod}$ ergibt. Die Auswertung sollte aus diesem Grund bei großen Strichlängen erfolgen.

In Abb. 3.9 sind die Verstärkungsspektren für die vorgestellten Methoden dargestellt, die unter Berücksichtigung der möglichen Fehlerquellen errechnet wurden. Die Verstärkung erstreckt sich über einen weiten Bereich von 300 meV und erreicht dabei Werte von bis zu 180 cm^{-1} . Die energetische Breite des Verstärkungsbereichs ist durch die inhomogene Verbreiterung begründet, da die Vielfalt der Konfigurationen der an Sb reichen Domänen in der quantenpunktartigen Struktur ein entsprechend breites Spektrum an elektronischen Zuständen anbietet.

Das über die lxl-Methode ($x = 1, 2$, grün) errechnete Spektrum hat die besten kombinierten Eigenschaften bezüglich spektraler Treue, Höhe der Verstärkung und Rauschen. Auch im Absorptionsbereich, wo sich die Auswertung über die Strichlängenmethode aufgrund der niedrigen Zählrate und des damit intrinsisch niedrigen Dynamikbereichs generell problematisch darstellt, wird das Verstärkungsspektrum noch mit niedrigem Rauschen wiedergegeben.

Das Verstärkungsspektrum, welches über die l2l-Methode gewonnen wurde (rot), weist eine ähnliche Linienform auf, neigt jedoch wie schon im theoretischen Modell zur Unterschätzung der Verstärkung. Die schwarze Kurve wurde ebenfalls mit der l2l-Methode ermittelt, wobei in diesem Fall die Auswertung bei einer Strichlänge von 0,35 mm und damit absichtlich oberhalb der optimalen Strichlänge durchgeführt wurde. Wie sich zeigt, reicht die geringe Abweichung von der optimalen Strichlänge aus, um das Spektrum vollständig zu verfälschen. Das auf diese Weise fehlerhaft ermittelte Spektrum suggeriert Verstärkungswerte, die weniger als halb so groß sind wie die, die mit der lxl-Methode ermittelten wurden. Auch die Absorption wird stark ins Negative verschoben. Die deutliche Abweichung unterstreicht die Notwendigkeit einer dynamischen Auswertemethode, der keine

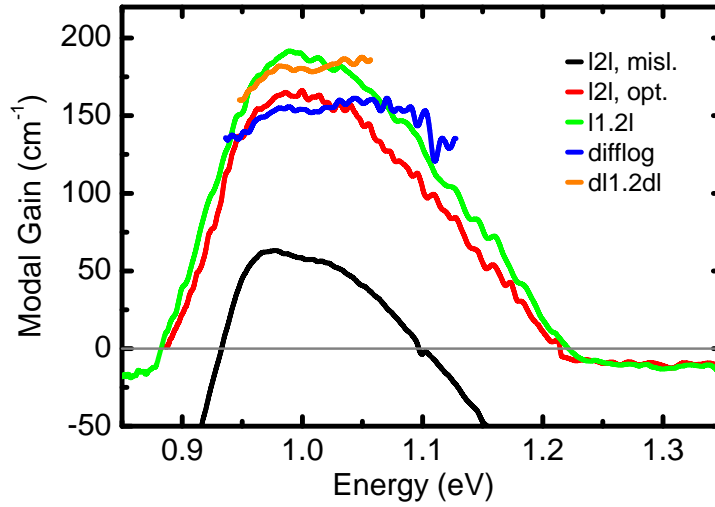


Abbildung 3.9: Experimenteller Vergleich der Auswertemethoden für die Probe B812/9mm. Das Material weist über einen großen spektralen Bereich von 300 meV Verstärkung auf, die bis zu 180 cm^{-1} beträgt. Da die Methoden die Verstärkung nach Ausschluss der genannten Fehlerquellen stets unterschätzen, gibt das über die l_{x1} -Methode für $x=1,2$ gewonnene Spektrum die Verstärkung am genauesten wieder. Die l_{2l} -Methode unterschätzt die Verstärkung, weist aber bis auf einen Skalierungsfaktor die gleiche Linienform auf. Wählt man das Auswertefenster bewusst falsch, erhält man eine grobe Unterschätzung (schwarz). Die differentiellen Methoden liefern nur im Bereich hoher Verstärkung brauchbare Werte. Zur Orientierung ist die Null als dünne graue Linie mit eingezeichnet.

festen Intervalle zugrunde liegen und die variabel auf die sich in der Regel mit der spektralen Position ändernde Emissionscharakteristik reagiert.

Die differentiellen Methoden, hier exemplarisch anhand der $\partial l \partial x_{1l}$ -Methode (gelb) für $x = 1,2$ demonstriert, und die für Inhomogenitäten des Anregungsintensitätsprofils unempfindliche difflog-Methode (blau) eignen sich aufgrund ihrer Rauschanfälligkeit nur bedingt für die Auswertung in Bereichen mit niedriger Verstärkung. Für den Bereich maximaler Verstärkung eignen sie sich, um einen Vergleichswert zu ermitteln und um zu überprüfen, ob das Anregungsintensitätsprofil eine ausreichende Homogenität aufweist. Im vorliegenden Fall kann durch die gute Vergleichbarkeit der Verstärkungswerte von l_{x1} - und difflog-Methode davon ausgegangen werden, dass das Anregungsprofil diese Voraussetzung erfüllt.

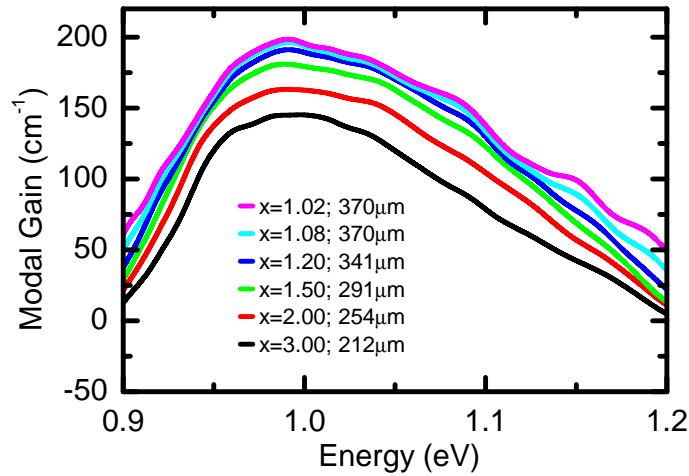


Abbildung 3.10: Konvergenz der mittels der *lxl*-Methode ermittelten Verstärkungsspektren für $x \rightarrow 1$, Probe B812/9mm. Die beim Vergleich der zu $x = 2$ und $x = 3$ gehörenden Spektren noch große Diskrepanz verringert sich stark, wenn sich bei kleinerem x die Auswertepunkte weiter annähern. Die Unterschiede bei $x = 1,08$ und $x = 1,02$ sind schließlich vernachlässigbar. Trotz des geringeren Verhältnisses der Intensitäten bei kleineren Werten für x nimmt das Rauschen nur in geringem Umfang zu.

Abbildung 3.10 demonstriert abschließend die Konvergenz der über die *lxl*-Methode ermittelten Verstärkung für $x \rightarrow 1$. Es zeigt sich, dass sich das Maximum der Verstärkung mit fallendem x zu größeren Strichlängen verschiebt, was den Einfluss der Sättigung nochmals unterstreicht. Durch die für kleine x nah beieinanderliegenden Auswertungspunkte l_1 und l_2 erreicht der obere Punkt l_2 den Sättigungsbereich erst bei größeren Werten von l_1 , als dies bei höheren Werten von x der Fall ist. Somit kann das Auswertefenster zu größeren Strichlängen und damit potentiell aus dem Bereich zu niedriger Signalstärken verschoben werden. Selbst für extreme Werte von $x = 1,02$ ist noch keine signifikante Zunahme des Rauschens erkennbar.

3.2.3 Zusammenfassung

Die verschiedenen Auswertemethoden, die im letzten Abschnitt vorgestellt und analysiert wurden, weisen verschiedene Vor- und Nachteile auf, die es nicht zulassen, eine allgemeingültige Rangfolge aufzustellen.

Durch die numerische Erweiterung der l2l-Methode kann das Sättigungsproblem weitgehend vermieden werden. Generell ist bei der Auswertung darauf zu achten, anhand der Emissionscharakteristik den Verstärkungs- und Absorptionsbereich klar zu trennen, um jeweils die optimalen Auswertungsparameter zu benutzen. Liegt Absorption vor, sollte die Auswertung mit weit separierten Stützstellen erfolgen, um das Rauschen zu minimieren. Im Bereich von positiver Verstärkung muss der Einfluss der Sättigung umgangen werden, was mit nah beieinanderliegenden Stützstellen erreicht wird. Die erfahrungsgemäß zu erwartenden Rauschpegel ergeben auch in diesem Fall, i.e., bei Werten von x nah bei 1, noch eine niedrige Streuung der Verstärkungswerte.

Als Ergänzung zu der numerisch robusten lxl-Methode kann die difflog-Methode benutzt werden, um zu überprüfen, ob die Verstärkung durch Inhomogenitäten im Intensitätsprofil der Anregungslichtquelle verfälscht wurde, was in der Regel aber nur bei Proben mit sehr hoher Verstärkung und somit kleinen Strichlängen notwendig ist. Gleiches kann mit der $\partial^2\partial$ -Methode erreicht werden, wenn ein hinreichend weit vom Probenrand entfernter Bereich untersucht wird.

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass man über die l2l-Methode für keines der in dieser Arbeit betrachteten Materialsysteme korrekte Ergebnisse erhalten hätte, da die Proben in Kombination mit dem Rauschpegel der Messapparatur stets die Sättigungsproblematik aufwiesen. Durch die aus diesem Beweggrund entwickelte lxl-Methode konnten verlässliche Ergebnisse ermittelt werden, die durch die Konvergenz der Methode für Variation des Parameters x bestätigt wurden.

3.3 Ladungsträgerverarmung bei hoher Verstärkung

Eine fundamentale Annahme, die der Strichlängenmethode zugrunde liegt, ist die Homogenität der Verstärkung über das angeregte Raumgebiet, die nur unter gewissen Umständen gegeben ist [Dan95, Neg04, Kyh01]. Im vorigen Abschnitt wurde bereits untersucht, wie sich statistische Fluktuationen der Verstärkung auf die Verlässlichkeit der Methode auswirken.

Weiterhin findet durch den Verstärkungsprozess eine kontinuierliche Verringerung der Ladungsträgerdichte statt, die mit der optischen Anregung konkurriert. In jedem Raumgebiet stellt sich ein Gleichgewicht für die Ladungsträgerdichte ein. An den Enden des Striches herrscht durch die exponentielle Form von Gl. 3.1 ein stärkeres Lichtfeld, welches bei großer Strichlänge zu einer deutlichen Verringerung der Ladungsträgerdichte führt. Dadurch wird die Verstärkung verringert und typischerweise zu niedrigerer Energie verschoben, womit dann in Folge eine systematische Abweichung der Verstärkung vom Mittelwert vorliegt.

3.3.1 Theoretisches Modell

Um die ortsabhängige Ladungsträgerdichte n , Temperatur T und Photonendichte I zu simulieren, wird die Probe in ein eindimensionales Feld von N Zellen unterteilt, die jeweils durch einen vollständigen Satz dieser Variablen charakterisiert werden. Grundsätzlich verstehen sich alle Größen wie Ladungsträgerdichte n , Photonendichte I und deren zeitliche Ableitung als räumliche Dichten, was in der folgenden Betrachtung implizit vorausgesetzt wird. Die Photonendichte ist insbesondere auch als spektrale Dichte zu verstehen.

Die Ausbreitung des Lichts wird entlang des Striches untersucht und dabei in einen vorwärts (I^+) und einen rückwärts (I^-) propagierenden Teil aufgeteilt, der jeweils die Photonendichte als Funktion der Energie angibt. Die einheitliche Zelllänge Δz in Ausbreitungsrichtung gibt über die Lichtgeschwindigkeit im Medium c_{med} die Größe des Zeitschritts Δt vor, mit dem das System propagiert. Hierbei wird die Ausbreitung des Lichts durch die Übertragung des Lichtquantums von einer Zelle in die benachbarte mit jedem Zeitschritt berücksichtigt, womit eine Beschreibung über eine Differentialgleichung und die damit inhärenten Probleme vermieden werden. Es gilt:

$$I_{z,t+\Delta t}^+(E) = I_{z-\Delta z,t}^+(E) \cdot \gamma_{gain} \cdot g_{z-\Delta z,t}(E) \cdot \Delta z$$

$$I_{z,t+\Delta t}^-(E) = I_{z+\Delta z,t}^-(E) \cdot \gamma_{gain} \cdot g_{z+\Delta z,t}(E) \cdot \Delta z.$$

Die Photonendichten der Zellen werden hier mit jedem Zeitschritt um eine Zelle weitergereicht und entsprechend der in der entsprechenden Ausgangszelle herrschenden Verstärkung g erhöht. Im Grenzfall verschwindender Zellausdehnung ergibt sich die Differentialgleichung, die dem Bouguer-Lambert'schen Gesetz zugrunde liegt. An den Facetten, wo für eine der beiden Größen jeweils kein Nachbar vorhanden ist, wird die entsprechende Intensität auf Null gesetzt. Die Verstärkung wird dabei mit einem Confinementfaktor γ_{gain} multipliziert, welcher durch die Güte des Resonators bestimmt ist und im Wesentlichen durch den räumlichen Überlapp der optischen Mode mit den Wellenfunktionen der Ladungsträger, den Kontrast des Brechungsindex und den räumlichen Abstand der entsprechenden epitaktischen Schichten um den Quantenfilm herum beeinflusst werden kann. Für die Simulation wurde $\gamma_{gain} = 0,08$ gewählt.

Abhängig von Temperatur und Ladungsträgerdichte entsteht in jeder Zelle Photolumineszenz (PL), deren spektrale Form über die Kubo-Martin-Schwinger-Relation [Mar59] berechnet wird. Hierbei wird das lineare Absorptionsspektrum des Materials α_0 mit einer Fermiverteilung multipliziert, die durch das Fermi-niveau und die Temperatur des angeregten Systems charakterisiert ist:

$$\frac{d}{dt} I_{PL}(E, T) = \frac{f_{\mu,T}(E) \cdot \alpha_0(E, T)}{\int f_{\mu,T}(E) \cdot \alpha_0(E, T) dE} \cdot \frac{n}{\tau_{PL}}. \quad (3.18)$$

Die Intensität der Emission wird durch eine Normierung angepasst, so dass im Fall eines punktuell angeregten und dann isolierten Systems die Ladungsträgerdichte n mit einer charakteristischen Zeitkonstanten τ_{PL} exponentiell abfällt. Typische Werte, die auch in dieser Simulation verwendet wurden, liegen im Bereich von 1 ns. Um die Geometrie der Emission der PL zu berücksichtigen, wird ein optischer Confinementfaktor γ_{PL} für die Photolumineszenz eingeführt. Dieser bestimmt, welcher Bruchteil der PL entlang des Striches emittiert wird und damit für den Verstärkungsprozess relevant ist. In dieser Simulation wurde $\gamma_{PL} = 0,02$ gewählt. Die Anregung der Probe wird über einen konstanten Zufluss j_{pump} von Ladungsträgern in jede Zelle simuliert. Zusammen mit den Verlusten durch PL und stimulierte Emission ergibt sich für die zeitliche Ableitung der Ladungsträgerdichte die Beziehung

$$\frac{d}{dt} n = j_{pump} - \int \frac{d}{dt} I_{PL} dE - \int (I^+ + I^-) \cdot g \cdot c_{med} dE - \frac{n}{\tau_{trap}}, \quad (3.19)$$

welche mit dem letzten Term die monomolekulare Rekombination, wie sie an Störstellen abläuft, mit einer phänomenologischen Zeitkonstante von τ_{trap} berück-

sichtigt. Die Verstärkung selbst wird über die Ladungsträgerdichte n und die Temperatur T mithilfe einer formalanalytischen Lösung der Halbleiter-Bloch-Gleichungen (siehe Anhang 6.1) [Hau04] als der Imaginärteil der Suszeptibilität des elektrischen Feldes berechnet. Dabei wird auf eine dynamische Betrachtung der Ladungsträgerdichte verzichtet, i.e., $\frac{d}{dt}n = 0$. Die selbstkonsistente Gleichung für die Polarisierung wird gemäß der Padé-Approximation [Cho99] bis zur ersten Ordnung aufgelöst. Die durch Coulombwechselwirkung hervorgerufene Abschirmung der Ladungsträger wird über die Plasmonpolnäherung approximiert, so dass die Wechselwirkung auf die kollektive Antwort des Plasmas reduziert wird. Als Materialparameter wurden eine effektive Lochmasse von $0,52 m_e$, eine effektive Elektronenmasse von $0,067 m_e$ und eine Bandlücke von $1,42 \text{ eV}$ angesetzt, womit das Verhalten von GaAs wiedergegeben werden soll. Die Temperatur jeder Zelle wird durch die Überschussenergie des Anregungslichts und die Rekombination an dunklen Störstellen beeinflusst. Über beide Mechanismen wird eine thermische Leistung in den Quantenfilm eingebracht, die mit der Wärmekapazität von GaAs in eine Temperaturerhöhung umgerechnet wird. Über einen pessimistisch abgeschätzten Wärmeleitkoeffizienten wird der Abfluss der Wärme simuliert, wobei sich auch bei sehr kleinem Koeffizienten herausstellt, dass für Simulationsparameter, die den Rahmenbedingungen des Experiments entsprechen, die Temperatur konstant bleibt. Aus diesem Grund werden Temperatureffekte aus der folgenden Diskussion ausgespart und stets eine Probentemperatur von 300 K angesetzt. Die Diffusion der Ladungsträger wurde für eine typische Strichbreite von $20 \mu\text{m}$ über den ambipolaren Diffusionskoeffizienten abgeschätzt und ebenso für vernachlässigbar befunden.

3.3.2 Ergebnisse

In Abb. 3.11 sind die mit der Theorie berechneten Spektren für ein Material mit einer Bandlücke von $1,42 \text{ eV}$ dargestellt. Die Ladungsträgerdichten reichen von $1 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ bis $2,6 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. Die Spektren stellen die Materialverstärkung dar und unterscheiden sich folglich von den Spektren der modalen Verstärkung um den Faktor γ_{gain} . Man erkennt mit zunehmender Ladungsträgerdichte eine Verbreiterung und Erhöhung der Verstärkung, die auch mit der Renormalisierung der Bandkante einhergeht. Die Theorie berücksichtigt einen elektronischen Übergang, so dass sich ein einzelnes Absorptionsmaximum ausbildet.

Für die Simulation wurde die Injektionsrate der Ladungsträger so gewählt, dass sich in der Quasigleichgewichtssituation unter Berücksichtigung von PL und Störstellenrekombination eine Ladungsträgerdichte von $2,5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ ergibt. Durch die stimulierte Emission kommt es zu einer ortsabhängigen Photonendichte und

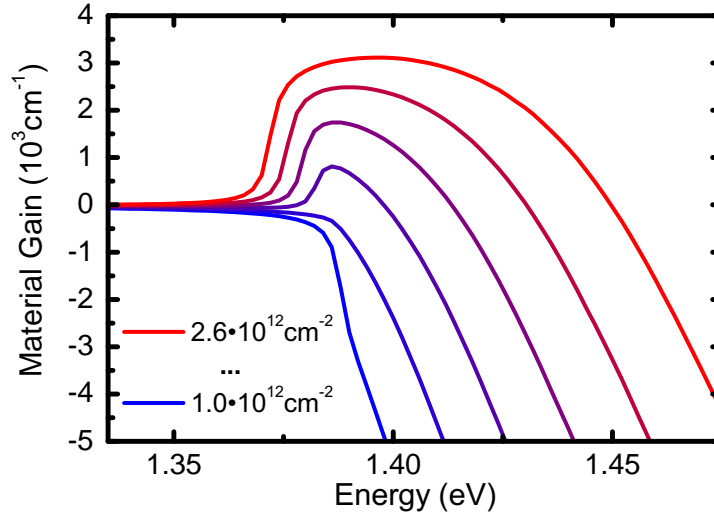


Abbildung 3.11: Theoretische Verstärkungsspektren, wie sie in der Simulation verwendet werden. Das Modell zur Ladungsträgerverarmung bei der Strichlängenmethode unterteilt den Strich in eine Anzahl gleich großer Zellen, die jeweils durch eine Ladungsträgerdichte, eine Temperatur und die entlang des Strichs propagierenden Photonendichten charakterisiert werden. Über einen in der Dichte statischen Ansatz wird mithilfe der Halbleiter-Bloch-Gleichungen die Verstärkung berechnet, die jeweils lokal in jeder Zelle herrscht. Die Abbildung zeigt eine Reihe von Spektren bei hohen Ladungsträgerdichten im Bereich von $1 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ bis $2,6 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. Man erkennt ein mit steigender Dichte zu höheren Energien schiebendes Maximum.

damit zu einem zusätzlichen, stimulierten Rekombinationskanal, der wiederum eine ortsabhängige Ladungsträgerdichte hervorruft. In Abb. 3.12 ist für eine Reihe von Strichlängen die entsprechende Ladungsträgerdichte im Quasigleichgewicht als Funktion des Ortes aufgetragen. Zur besseren Übersicht ist die Auftragung um die Mitte des Strichs zentriert vorgenommen. Die oberste Kurve bei sehr kurzer Strichlänge von 0,1 mm weist einen nahezu konstanten Verlauf auf. Die Ladungsträgerdichte nimmt über den gesamten Strich den durch die Anregungsbedingung vorgegebenen Wert von $2,5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ an.

Für die nächstgrößeren Strichlängen ab 0,2 mm reicht die Länge des Striches bereits aus, um mit der gegebenen Verstärkung eine signifikante Photonendichte aufzubauen, was zu einem Abbau von Ladungsträgern über das Maß von PL und Störstellenrekombination hinaus führt. Im Extremfall von 1,0 mm Strichlänge sinkt die Ladungsträgerdichte an den Rändern des Striches auf $1,38 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$

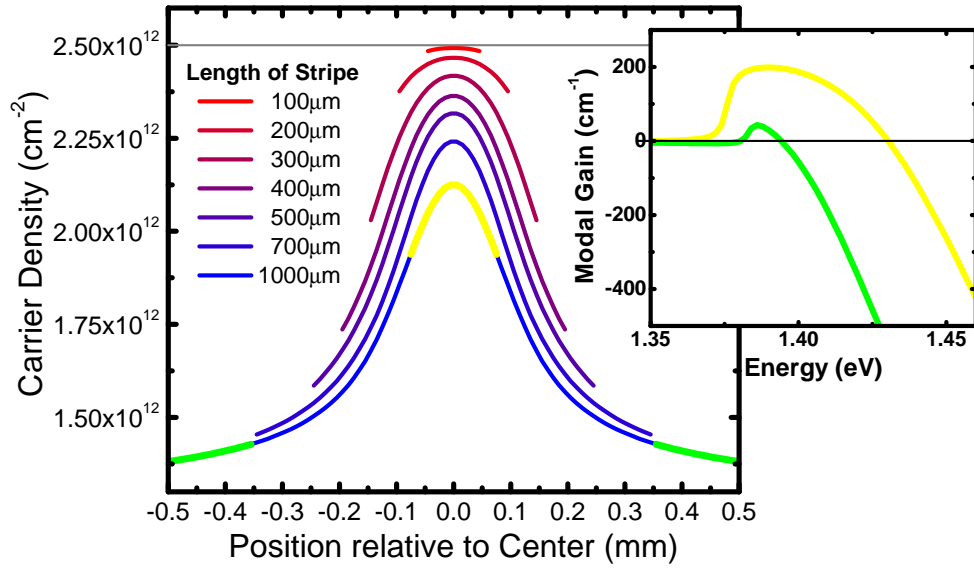


Abbildung 3.12: Räumliche Dichteverteilung entlang des Striches bei der Simulation zur Ladungsträgerverarmung. Für eine Reihe von Strichlängen von $100\text{ }\mu\text{m}$ bis $1000\text{ }\mu\text{m}$ ist der sich im Quasigleichgewicht einstellende Dichteverlauf als Funktion der Distanz zum Zentrum des Strichs aufgetragen. Die Anregungsleistung ist so gewählt, dass sich ohne stimulierte Emission an jedem Punkt ein Wert von $2,5 \cdot 10^{12}\text{ cm}^{-2}$ einstellt. Durch das exponentielle Wachstum der Photonendichten entlang des Striches wird die Ladungsträgerdichte am Rand des Striches stärker verringert als im Zentrum. Im Extremfall ($1000\text{ }\mu\text{m}$) wird am Rand fast der Transparenzpunkt erreicht. Der Einsatz zeigt die beiden Verstärkungsspektren, die den gleichfarbigen Dichten im Zentrum und am Rand des Striches entsprechen.

und im Zentrum auf $2,13 \cdot 10^{12}\text{ cm}^{-2}$. In der eingesetzten Grafik rechts sind die Verstärkungsspektren zu diesen beiden Extremwerten dargestellt. Man erkennt, dass sich zwischen Zentrum und Rand des Striches das Maximum der Verstärkung sowohl stark verschiebt als auch um mehr als einen Faktor fünf ändert. In diesem Fall ist die Homogenität der Verstärkung nicht mehr in einem sinnvollen Rahmen gegeben und die Grundannahme der Strichlängenmethode nicht erfüllt.

Abbildung 3.13 illustriert die Problematik nochmals anhand von Intensitätsprofilen der verstärkten spontanen Emission entlang eines Striches von 1 mm Länge. Neben dem in schwarz eingezeichneten Dichteverlauf ist die jeweils über alle Energien integrierte Intensität der beiden symmetrischen Photonendichten I^+ und I^- in blau und rot in logarithmischer Skalierung abgebildet. Vom Rand ausgehend

findet zunächst ein linearer Anstieg des Signals statt (nur in linearer Skalierung erkennbar), der durch die linear zunehmende kumulierte PL zustande kommt. Die Verstärkung ist an diesem Punkt noch nicht dominant, da die absolute Intensität der verstärkten spontanen Emission zu gering ist. Ab einer Distanz von 0,4 mm bis 0,15 mm zum Zentrum findet ein exponentielles Anwachsen der Intensität durch den Verstärkungsprozess statt. Im Zentrum des Striches liegt die höchste Verstärkung vor, wodurch ein schnelleres Anwachsen der Intensität, hier deutlich erkennbar anhand der steileren Flanken der beiden Kurven, als im Randbereich zustande kommt. Auf dem verbleibenden Wegstück zum Rand hin verläuft das Wachstum wieder langsamer. Die kombinierte Photonendichte (grün) zeigt, dass an den Rändern des Striches eine um mehr als eine Größenordnung höhere Photonendichte als im Zentrum herrscht.

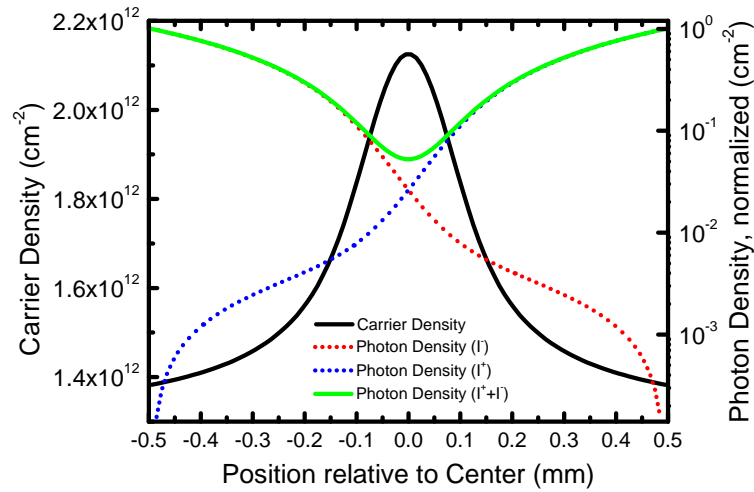


Abbildung 3.13: Ladungsträgerdichte und spektral integrierte Photonendichte entlang eines Striches von 1 mm Länge. Die symmetrischen Photonendichten I^+ und I^- (rot bzw. blau, gepunktet) lassen sich in vier charakteristische Bereiche einteilen. Zu Beginn bestimmt die spontane Emission den Anstieg der Intensität. Im zweiten Bereich mit 0,4 mm bis 0,15 mm Abstand zum Zentrum folgt ein exponentieller Anstieg. Im Bereich des Zentrums ist die Ladungsträgerdichte deutlich höher, so dass eine größere Verstärkung vorliegt und die Photonendichte schneller ansteigt. Bis zum Rand hin liegt wieder eine niedrigere Verstärkung vor, und die Photonendichte steigt wieder wie im zweiten Bereich. Anhand der Summe beider Photonendichten (grün) wird ersichtlich, dass die Photonendichte am Rand um mehr als eine Größenordnung höher ist als im Zentrum.

Mit zunehmender Strichlänge verschmälert sich das Spektrum der verstärkten spontanen Emission mehr und mehr, da die Photonenenergie, bei der die Verstärkung maximal ist, bevorzugt wird. Im Grenzfall großer Strichlängen wird dabei durch die hohe Photonendichte die Ladungsträgerdichte auf einem Wert stabilisiert, der dem Transparenzpunkt entspricht. Für endliche Strichlängen wird sich ein Verstärkungsspektrum einstellen, welches in einem kleinen Energiebereich noch Verstärkung aufweist.

In Abb. 3.14 ist dieser Zusammenhang erläutert. Die doppelt-logarithmische Auftragung zeigt für einige ausgewählte Photonenenergien die aus der Facette

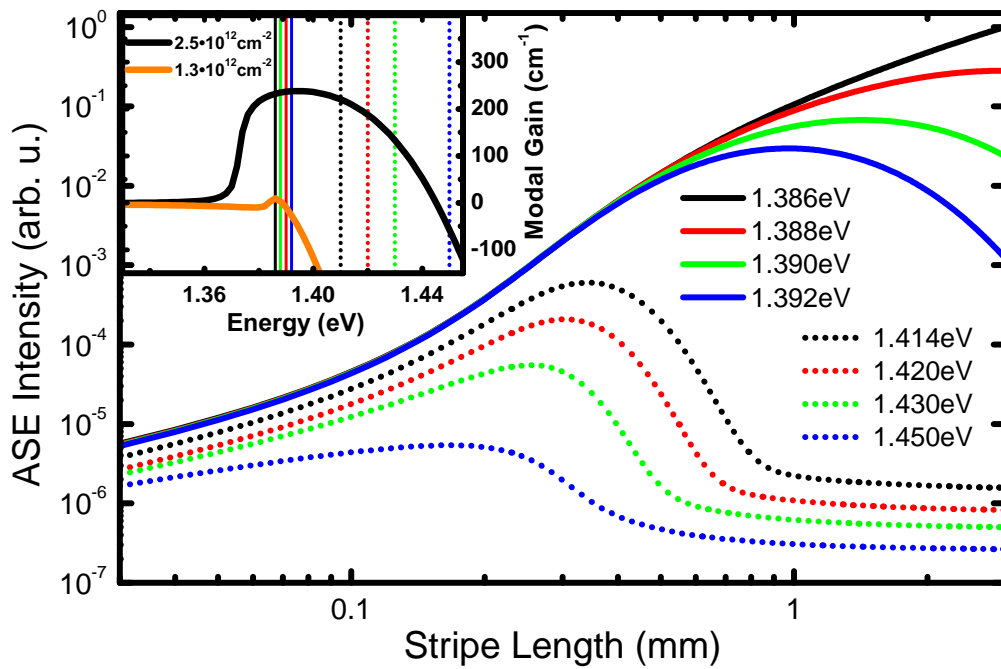


Abbildung 3.14: Verstärkte spontane Emission (ASE) aus der Facette des Striches an verschiedenen energetischen Positionen in doppelt-logarithmischer Auftragung. Die Abbildung zeigt jeweils vier Emissionskurven in der Nähe des Verstärkungsmaximums und zu höherer Energie bis zu einer Strichlänge von 3 mm. Im Einsatz oben links sind die energetischen Positionen durch vertikale Linien gleicher Farbe markiert. Ein strikt monoton steigender Verlauf liegt lediglich bei einer Energie (1,386 eV) vor, welche sich gegen die anderen Energien durchsetzt. Dies wird deutlich anhand des Verstärkungsspektrums im Einsatz (orange, $n = 1,3 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$), welches die Verstärkung am Rand des 3 mm langen Striches darstellt. Sein Maximum fällt mit der dominanten Photonenenergie zusammen.

emittierte Intensität als Funktion der Strichlänge. Anders als in Abb. 3.13 ist hier nicht die probeninterne Intensität bei konstanter Strichlänge dargestellt, sondern die auch im Experiment ermittelte Ausgangsintensität. Die durchgezogenen Linien liegen energetisch in der Nähe des Verstärkungsmaximums. Zur Orientierung ist die genaue energetische Lage im Einsatz oben links anhand zweier Verstärkungsspektren mit der jeweils gleichen Strichfarbe und -art markiert. Die beiden Spektren gehören zu Ladungsträgerdichten, die sich bei kurzem Strich zentral (schwarz, $n = 2,5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$) bzw. bei 3 mm langem Strich am Rand (orange, $n = 1,3 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$) einstellen.

Die schwarze Linie liegt bei einer Energie von 1,386 eV, die sich im Limes $l \rightarrow \infty$ in Bezug auf die Intensität durchsetzt und mit der Energie am Verstärkungsmaximum des Niedrigdichtespektrums zusammenfällt. Der Kurvenverlauf ist als einziger strikt monoton steigend. Je weiter die Entfernung zu dieser energetischen Position ist, desto mehr leiden die entsprechenden Kurven unter der Ladungsträgerverarmung, die durch die starke stimulierte Emission an der dominanten Energie hervorgerufen wird. Für jede Kurve existiert eine Strichlänge, ab der die Ladungsträgerdichte soweit verringert wird, dass der Verstärkungsprozess bei der entsprechenden Energie zum Erliegen kommt. Wird der Strich weiter verlängert, sinkt die emittierte Intensität sogar wieder. Dies gilt gleichermaßen für den Absorptionsbereich (blaue, gepunktete Linie) als auch für den Bereich mit Verstärkung (restliche Linien).

In Abb. 3.15 ist die Auswertung des simulierten Experiments über die *lxl*-Methode mit $x = 1,05$ dargestellt. Die analog zum realen Experiment aus den Photonenintensitäten an der Facette ermittelten Spektren (gestrichelte Linien) sind für verschiedene Strichlängen von $100 \mu\text{m}$ bis $1000 \mu\text{m}$ aufgetragen. Da kein statistischer Einfluss wie Detektorrauschen vorliegt, können auch kleine Strichlängen zur Auswertung benutzt werden. Als Referenz sind zwei über die Theorie errechnete Spektren (durchgezogene Linien) dargestellt, wobei das zu höherer Dichte gehörende Spektrum (schwarz, $n = 2,5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$) wieder den Fall kurzer Strichlängen repräsentiert, bei dem keine signifikante stimulierte Emission vorliegt. Das Niedrigdichtespektrum (grün, $n = 1,38 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$) stellt sich am Rand des 1 mm langen Striches ein. Bei einer Strichlänge von $100 \mu\text{m}$ wird das Hochdichtespektrum fast exakt reproduziert. Durch eine Auswertung bei kleinen Strichlängen kann somit eine Verfälschung des Verstärkungsspektrums vermieden werden.

Das bei $200 \mu\text{m}$, einer für das Experiment typischen Strichlänge, ausgewertete Spektrum zeigt bereits eine deutliche Abweichung vom Vorgabespektrum von mehreren 10 %, die auch je nach Energie unterschiedlich ausfällt. Durch die unterschiedlichen Ladungsträgerdichten über die Länge des Striches stellt sich

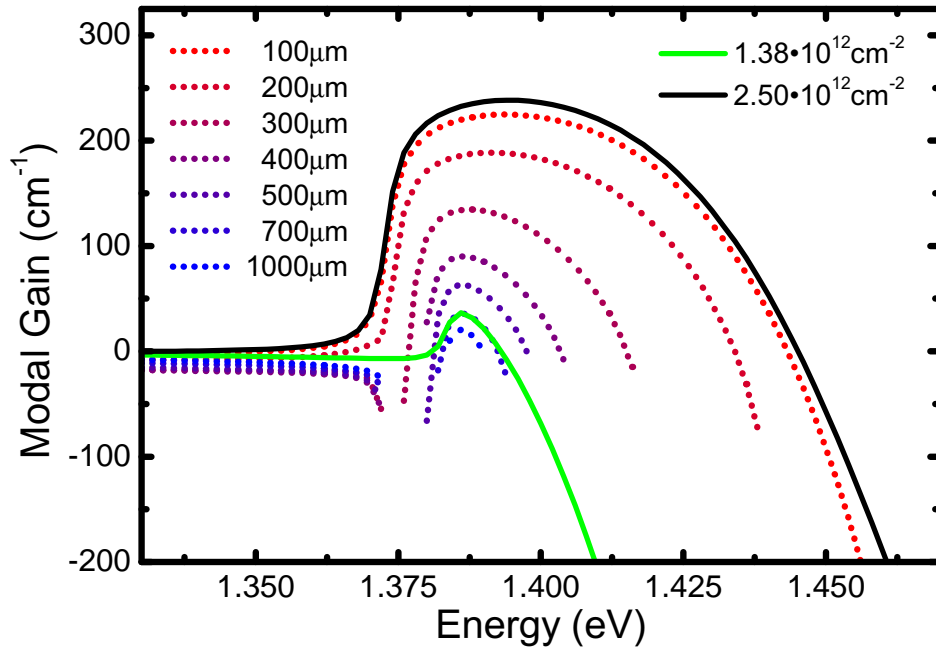


Abbildung 3.15: Auswertung der über die Simulation zur Ladungsträgerverarmung gewonnenen Daten. Die durchgezogenen Linien zeigen die Verstärkung bei der vorgegebenen Dichte (schwarz, $n = 2,5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$) und der kleinsten Dichte, die am Rand des 1000 μm langen Striches herrscht (grün, $n = 1,38 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$). Wird die Auswertung bei einer Strichlänge von 100 μm durchgeführt, so ist fast keine Abweichung zum vorgegebenen Spektrum zu erkennen. Bei im Experiment realistischen 200 μm sind bereits deutliche Abweichungen zu erkennen. Im Extremfall von 1000 μm Strichlänge liegt die Verstärkung sogar unter der tatsächlich am Rand des Striches herrschenden, und unterhalb der Bandkante erhöht sich scheinbar die Absorption (siehe Text).

an jedem Punkt der Probe ein anderes Verstärkungsspektrum ein, so dass die energetische Position und die Höhe des Verstärkungsmaximums über die Probenposition variieren. Analog zur Betrachtung der lokalen Fluktuationen der Verstärkung in Abschnitt 3.2.1 entspricht die tatsächliche Verstärkung entlang der Probe dem Mittelwert der lokalen Verstärkungen. Das Spektrum fällt in der Regel breiter und flacher aus als das tatsächliche Verstärkungsspektrum. Über die Methode jedoch ermittelt man ein effektives Verstärkungsspektrum, welches nicht diesem gemittelten Spektrum entsprechen muss, wie im Folgenden erläutert wird.

Das letzte Spektrum wurde bei $1000\,\mu\text{m}$ ausgewertet und liegt unterhalb des dort vorherrschenden Spektrums (grüne, durchgezogene Kurve). Dies lässt sich anschaulich verstehen, wenn man die Tendenz der Ladungsträgerdichte mit steigender Strichlänge betrachtet. Durch die hohe Verstärkung im mittleren Bereich des Striches erreicht die Photonendichte einen hohen Wert, der am Rand des Striches, wo die Auswertung vorgenommen wird, nur noch leicht verstärkt oder sogar bereits wieder absorbiert wird, wie bei Abb. 3.14 diskutiert. Das weitere Wachstum findet somit auf einem hohen Signaluntergrund statt. Addiert man einen Untergrund zur fundamentalen Strichlängengleichung 3.1, so verringert sich die ermittelte Verstärkung. Im Absorptionsbereich, beispielsweise unterhalb der Bandkante im Bereich von $1,35\,\text{eV}$, werden aus diesem Grund sogar negative Werte errechnet, wo Transparenz vorliegen müsste.

3.3.3 Zusammenfassung

Die Simulation lässt erkennen, wie durch die exponentielle Verstärkung der PL entlang des Striches die Ladungsträgerdichte beeinflusst wird. An den Rändern des Striches findet eine stärkere Verringerung der Ladungsträgerdichte als im Zentrum statt. Bei Strichlängen ab $0,15\,\text{mm}$ wird dieser Effekt signifikant und bewirkt eine Unterschätzung der Verstärkung über die Auswertungsmethoden. Die Konkurrenz der verschiedenen energetischen Anteile um die Verstärkung lässt die Emission schmaler werden und bewirkt bei hinreichend großen Strichlängen sogar einen Rückgang der Intensität. Dieses Phänomen schließt im Grenzfall unendlicher Strichlänge alle Energien außer der durch die Verstärkungscharakteristik bevorzugten ein. Letztere wird definiert durch die energetische Position, an der mit steigender Ladungsträgerdichte zuerst positive Verstärkung auftritt.

Mit dieser Analyse wurde zusätzlich zu der in Abschnitt 3.2.1 diskutierten Rauschproblematik auch die Sättigung des Ausgangssignals untersucht. Die hierbei gewonnenen Erkenntnisse tragen zum Verständnis der experimentell gewonnenen Intensitätsverläufe bei und erlauben es, einen Gültigkeitsbereich von Strichlängen zu definieren, in dem eine Auswertung verlässliche Ergebnisse ergibt. Für Materialien, deren Emissionscharakteristik derart ausfällt, dass die Auswertung außerhalb dieses Bereichs durchgeführt werden muss, stellt das gewonnene Verstärkungsspektrum eine Abschätzung dar, die spektral zu breit und bezogen auf den Maximalwert zu niedrig ausfällt. Für alle Betrachtungen wurde die Verstärkungscharakteristik eines typischen Quantenfilmsystems zugrunde gelegt.

3.4 Verstärkung an Ga(NAsP) Quantenfilmen auf Silizium

In Kapitel 2 wurde bereits ein mögliches Lasermaterial für die monolithische Integration in die Siliziumtechnologie vorgestellt. Durch die nur geringfügig unterschiedlichen Gitterkonstanten der Materialien konnten die epitaktischen Schichten direkt und defektfrei auf das Substrat aufgebracht werden. Für eine Vielzahl von etablierten Halbleiterlasermaterialien ist dieser Wachstumsprozess auf Silizium nicht ohne Weiteres defektarm möglich, da sich die Gitterkonstanten zu sehr unterscheiden.

Nach intensiven Bemühungen ist es erstmals gelungen, das quaternäre Lasermaterial Ga(NAsP) [Bor06] defektarm und gitterangepasst auf einer in $\langle 001 \rangle$ -Richtung orientierten Siliziumoberfläche per MOVPE herzustellen¹. Die Kombination aus Siliziumsubstrat und III/V-Quantenfilm stellt eine besondere Herausforderung dar. Unter anderem ist ein defektfreies Wachstum nur möglich, wenn die Einflüsse der hierfür hauptsächlich verantwortlichen Ursachen wie die Ladungsneutralität an den Grenzflächen, die Unordnung an Antiphasendomänen und die Unterschiede in den Gitterkonstanten und thermischen Ausdehnungskoeffizienten ausgeschaltet werden können. Die Kompensation der Verspannung der einzelnen Schichten gegeneinander bei gleichzeitig hoher epitaktischer Qualität stellt hierbei eine wesentliche Schwierigkeit dar.

Das Kristallwachstum findet in einer Kombination aus Silizium-Gasphasenepitaxiereaktor und MOVPE-Reaktor für das III/V-Material statt, die durch eine Transferkammer verbunden sind. In dem Siliziumreaktor findet zunächst bei 950 °C in einer Wasserstoffschutzatmosphäre die Reduktion der chemisch gereinigten Oberfläche des Siliziumsubstrates statt. Anschließend wird, ebenfalls in einer Wasserstoffschutzatmosphäre, eine 300 nm dicke Pufferschicht aus Silizium bei 800 °C mittels Monosilan (SiH_4) unter einem Druck von 50 hPa aufgebracht. Der in Folge durchgeführte 15-minütige Tempervorgang bei 975 °C unter Normaldruck erzeugt eine Kristalloberfläche, deren Stufen stets zwei Siliziummonolagen hoch sind. Durch diese Morphologie wird erreicht, dass die Oberfläche dieses Substrats mit einer einheitlichen Struktur abschließt, i.e., die Oberfläche überall dem gleichen Schnitt durch die Einheitszelle von Silizium entspricht. Für das darauffolgende Wachstum von GaP bedeutet dies, dass die Struktur der Einheitszelle an einer Stufe des Substrats erhalten bleibt, und nicht, wie im Fall von einer einatomaren Stufe des Substrats, ein

¹Dr. Bernadette Kunert, Dr. habil. Kerstin Volz, Dr. habil. Wolfgang Stolz, Wissenschaftliches Zentrum für Materialwissenschaften, Philipps-Universität Marburg

Austausch der Gitterplätze der Konstituenten Ga und P erfolgt. Die 3 nm dicke GaP-Schicht wird bei deutlich niedrigerer Temperatur von 450 °C in der MOVPE-Anlage aufgebracht, wobei die Precursor Triethylgallium (TEGa) und Tertiärbutylphosphin (TBP) zum Einsatz kommen. Auf die in diesem speziell entwickelten Prozess aufgebrachte Schicht kann dann bei einer Temperatur von 575 °C eine weitere Schicht aus GaP aufgebracht werden, in der verbleibende Antiphasengrenzen aufeinandertreffen und sich auslöschen, so dass schließlich eine defektfreie GaP-Oberfläche entsteht.

Die durch diesen Prozess hergestellte Kristallstruktur wurde, wie auch die darauf aufgetragenen Quantenfilme, mittels hochauflösender Röntgenbeugungsspektroskopie und Transmissionselektronenmikroskopie untersucht. Dabei wurde eine sehr hohe Kristallqualität mit äußerst niedriger Defektdichte ermittelt, wie sie auch beim Wachstum von Heterostrukturen auf einem intrinsischen Substrat, also beispielsweise (GaIn)As auf GaAs, erreicht wird. Details zu diesem Wachstumsprozess finden sich in den Referenzen [Kuna, Nem08]. Auf dieser Substratvorlage kann im Anschluss das Wachstum der eigentlichen Quantenfilmstruktur vorgenommen werden [Kunb], wie es im Folgenden besprochen wird.

3.4.1 Probenstruktur

Für die Untersuchung stand eine Reihe von Proben mit im Detail verschiedener Struktur zur Verfügung, von denen drei im folgenden Abschnitt und in Kapitel 4 repräsentativ untersucht werden sollen. Der Schichtaufbau folgt bei allen Exemplaren prinzipiell dem in Abb. 3.16 dargestellten Schema und ist lediglich in der Ausführung des zusätzlichen optischen Confinements, durch das eine Wellenleiterstruktur gebildet wird, und in der Anzahl der Quantenfilme von Probe zu Probe unterschiedlich. Die originalen Probennamen („15355“, „15367“ und „15510“) sollen der besseren Lesbarkeit halber gegen neue, durchnummerierte Namen (in gleicher Reihenfolge: „GaNAsP-1“, „GaNAsP-2“ und „GaNAsP-3“, siehe auch Abbildung) ersetzt werden.

Um die separate optische Führung der Lasermode zu gewährleisten, folgt eine 1 μm dicke Schicht (BGa)P (*GaNAsP-2*, *GaNAsP-3*). Die vier (*GaNAsP-1*, *GaNAsP-2*) bzw. drei (*GaNAsP-3*) jeweils etwa 4,5 nm dicken Quantenfilme aus Ga(NAsP) schließlich sind jeweils von einer etwa 4,5 nm dicken Schicht GaP umgeben, um das elektronische Confinement zu erreichen. Ein zusätzliches Confinement dieser Stapel wird durch eine weitere Trennung mittels einer 50 nm bzw. 60 nm dicken Schicht aus (BGa)(AsP) (*GaNAsP-1*, *GaNAsP-2*) bzw. (BGa)P (*GaNAsP-3*) gewährleistet. Die Quantenfilmstapel sind nach oben durch eine 1 μm

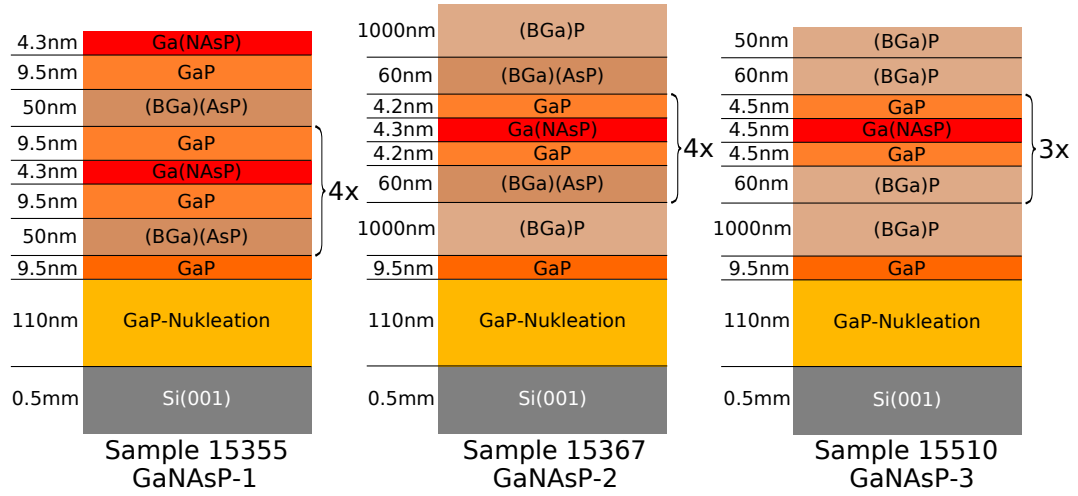


Abbildung 3.16: Schematische Darstellung der Struktur der Proben GaNAsP-1, GaNAsP-2 und GaNAsP-3. Der Aufbau der Proben ist bis auf das verschieden ausgeführte optische Confinement und die Dicken einiger Schichten identisch. Basis ist das in $\langle 001 \rangle$ -Richtung orientierte Siliziumsubstrat, auf das zunächst eine Nukleationsschicht aus GaP aufgebracht wird. Das Siliziumsubstrat wird in einem speziellen Prozess vorbereitet, der doppelte Stufen auf der Oberfläche bevorzugt. An der Grenzfläche zur GaP-Nukleationsschicht wird dadurch eine geringe Dichte an Antiphasengrenzen gewährleistet, welche sich zudem in der Schicht selbst weitgehend gegenseitig auslöschen. Die vier bzw. drei Quantenfilme aus Ga(NAsP) weisen eine Dicke etwa von 4,5 nm auf und sind durch ebenso dicke Barrieren aus GaP elektronisch eingeschlossen. Das optische Confinement wird durch Schichten aus (BGa)P bzw. (BGa)(AsP) erreicht.

(GaNAsP-2) bzw. 50 nm (GaNAsP-3) dicke Schicht abgeschlossen oder wie im Fall der Teststruktur GaNAsP-1 lediglich durch einen optisch passiven Quantenfilm abgedeckt. Die bei der Probe GaNAsP-3 im Vergleich zur Probe GaNAsP-2 geringere Dicke der Abschlusschicht verringert im Experiment die Verluste bei optischer Anregung.

In Abb. 3.17 ist der räumliche Bandkantenverlauf der für das elektronische Confinement relevanten Schichten für die Probe GaNAsP-2 schematisch dargestellt. Das Substratmaterial Si weist die kleinste Bandlücke auf und ist aus diesem Grund für die Emission aus den Quantenfilmen absorbierend. Die Schichten aus (BGa)P und (BGa)(AsP) bilden sowohl für die Elektronen als auch für die Löcher der Quantenfilme eine Barriere, es handelt sich somit um eine Struktur des Typs I. Zum Vergleich sind die beiden für das Experiment relevanten

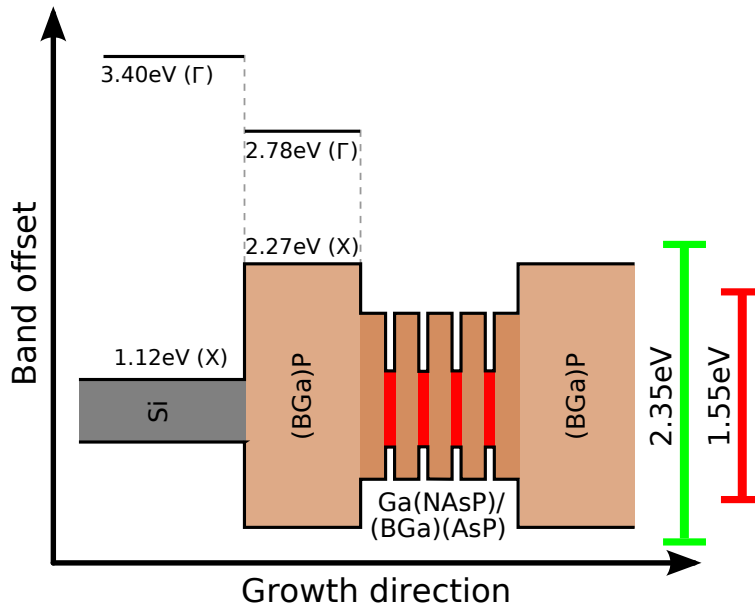


Abbildung 3.17: Schema zur Bandanordnung (Proben GaNAsP-1, GaNAsP-2 und GaNAsP-3). Das Substrat weist die kleinste Bandlücke auf und ist für die Emission der Quantenfilme absorbierend. Zum Vergleich sind die beiden Photonenenergien, mit denen die Anregung erfolgt, eingezeichnet. Bei der Strichlängenmethode kommt der Nd:YLF-Laser mit 2,35 eV zum Einsatz (grün), bei der Verstärkungsmessung nach Hakki-Paoli das Ti:Saphir-Verstärkersystem (1,55 eV, rot).

Anregungsphotonenenergien durch die beiden Balken in grün (Strichlänge, 2,35 eV) und rot (Hakki-Paoli, 1,55 eV, Kapitel 4) dargestellt.

3.4.2 Verstärkung

Zunächst wird an den in Abb. 3.18 dargestellten Verstärkungsspektren die prinzipielle Eignung des Materials für Laseremission anhand der Probe GaNAsP-1 demonstriert. Sämtliche Experimente wurden bei Raumtemperatur durchgeführt. Die Anregungsleistung war mit 34 Wmm^{-2} bis 288 Wmm^{-2} um bis zu etwa eine Größenordnung höher als bei den auf Ga(AsSb) basierten Quantenfilmen. Die Spektren weisen eine Verstärkungsbandbreite von über 250 meV auf. Mit steigender Anregungsleistung wächst die Verstärkung von 50 cm^{-1} auf maximal 90 cm^{-1} an. Da es sich um die von vielen geometrischen Faktoren beeinflusste modale Verstärkung handelt, ist ein direkter Vergleich dieses Werts mit dem

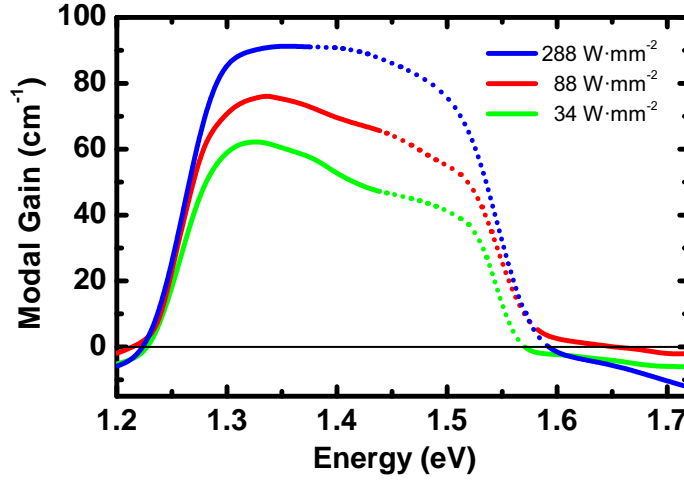


Abbildung 3.18: Verstärkungsspektren der Probe GaNAsP-1 bei Raumtemperatur. Die Anregungsleistung liegt bei 34 Wmm^{-2} bis 288 Wmm^{-2} und ist damit um bis zu eine Größenordnung höher als bei Ga(AsSb). Die Verstärkung wächst mit steigender Anregungsleistung von 50 cm^{-1} auf bis zu 90 cm^{-1} an, wobei eine maximale Bandbreite von 250 nm erreicht wird. Im Übergangsbereich zur Absorption sind die Spektren gepunktet dargestellt, um die Unsicherheit bei der Auswertung anzudeuten.

anderer Materialsysteme nicht sinnvoll. Durch hohe Anregungsphotonenenergie werden zudem in beiden Materialien auch die Barrieren der Quantenfilme angeregt, was zu einer zusätzlichen, in beiden Systemen potentiell verschiedenen Ladungsträgerzufuhr in die Quantenfilme führt. Aus diesem Grund sei lediglich angemerkt, dass die Verstärkung die gleiche Größenordnung wie die des Ga(AsSb)-Materialsystems erreicht.

Die Spektren sind aus technischen Gründen in drei Bereiche unterteilt. Die durchgezogenen Linien liegen im Bereich ausreichend hoher Absorption oder hoher Verstärkung und sind mit der Auswertemethode eindeutig bestimmbar. Im Übergangsbereich, der hier gepunktet dargestellt ist, liegt eine intrinsische Unsicherheit vor, was die genaue Lage des Transparenzpunktes betrifft. Speziell bei diesem Materialsystem ist die qualitative Unterscheidung der zum Absorptionsbereich und zu niedrigen Verstärkungswerten gehörenden Intensitätskurven $I(l)$ schwierig, da in diesem Bereich ein durch die Sättigung abflachendes Intensitätsprofil ($g_{mod} > 0$) einem gegen den Absorptionswert konvergierenden Profil ($g_{mod} < 0$) sehr ähnelt. Die Verstärkungswerte in diesem Bereich sind daher nicht gesichert und sollen

nur als Anhaltspunkt dienen. Der nächste Schritt in Richtung eines Lasers auf Basis dieses Materials ist die Untersuchung des Materials mit Resonator, wie es in Kapitel 4 durchgeführt wird.

3.4.3 Zusammenfassung

Mit der bei Raumtemperatur ermittelten Verstärkung von maximal 90 cm^{-1} bei einer Bandbreite von 250 meV ist die Grundlage für einen Laser auf Silizium bei Raumtemperatur gelegt. Die erfolgreiche Integration einer Laserstruktur in das in der Halbleiterindustrie etablierte Materialsystem Silizium, welches durch jahrzehntelange Optimierung der Prozesstechnologie und seine einzigartigen elektrischen Eigenschaften ein beispielloses Spektrum an Möglichkeiten und Leistungsfähigkeit erreicht hat, öffnet die Tür zu einer neuen Klasse der Optoelektronik.

Das für die weitere Entwicklung des Materials anvisierte Ziel muss lauten, die Materialqualität weiter zu steigern, um auch bei höheren Temperaturen im Bereich bis 100°C Laseremission zu erreichen. Gerade für die Integration in die Siliziumelektronik ist dieser Temperaturbereich von großer Bedeutung, da sich die typische Arbeitstemperatur eines Mikroprozessors im Bereich von 50°C bis 90°C bewegt.

3.5 Verstärkung an Ga(AsSb) Quantenpunktsystemen

Abschließend seien kurz die Ergebnisse für das bereits zur Erläuterung der Auswertungsmethode herangezogene Materialsystem Ga(AsSb) vorgestellt. Zur Erinnerung sei angemerkt, dass die Proben sich durch eine zwischen aktiver Schicht und Barriere aus $(\text{Al}_{0,25}\text{Ga}_{0,75})\text{As}$ zusätzlich eingebrachten Schicht aus GaAs unterscheiden. Die Dicke der Schicht variiert zwischen 0 nm und 9 nm . Die Probenstruktur, die in Abb. 3.5 dargestellt ist, wurde in Abschnitt 3.2.2 erläutert.

In Abb. 3.19 sind die bei verschiedenen Anregungsleistungen bei Raumtemperatur ermittelten Verstärkungsspektren der Probe B809/1nm mit 1 nm GaAs-Zwischenschicht dargestellt. Aus den im Hinblick auf die Absorption dargelegten Gründen wird nur der Bereich nennenswerter Verstärkung betrachtet. Bei einer niedrigen Anregungsleistung von $0,2\text{ Wmm}^{-2}$ bildet sich zunächst ein Verstärkungsmaximum von 175 cm^{-1} bei $0,977\text{ eV}$ aus, welches auf hochenergeti-

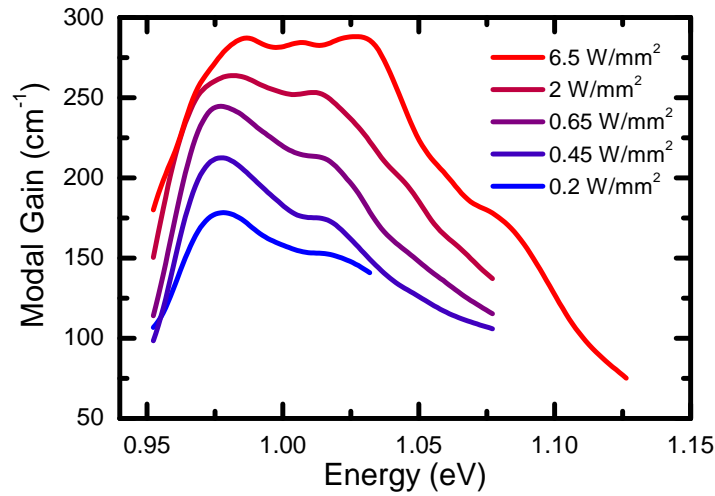


Abbildung 3.19: Verstärkungsspektren der Probe B809/1mm mit 1 nm GaAs-Confinementschicht. Die Probe weist mit bis zu 280 cm^{-1} die höchste Verstärkung der gesamten Serie auf, wobei eine Bandbreite von 150 meV erreicht wird. Bei niedriger Anregungsleistung bildet sich zunächst bei $0,977 \text{ eV}$ ein Verstärkungsmaximum aus. Der in der hochenergetischen Flanke erkennbare zweite Zustand folgt bei zunehmender Anregungsleistung und erreicht schließlich das gleiche Niveau. Bei der höchsten Anregungsleistung ist deutlich ein Verschieben der Maxima zu höheren Energien erkennbar.

scher Seite in einer flachen Flanke ausläuft. Die energetische Breite der Verstärkung beträgt hier mindestens 70 meV . Mit steigender Anregungsleistung erhöht sich die Verstärkung zunächst auf 240 cm^{-1} bei $0,65 \text{ Wmm}^{-2}$. In der Flanke tritt das durch den zweiten Zustand hervorgerufene Maximum bei $1,016 \text{ eV}$ deutlicher hervor, was auch den Bereich der Verstärkung auf mindestens 100 meV vergrößert. Bei der größten untersuchten Anregungsleistung von $6,5 \text{ Wmm}^{-2}$ erkennt man ein Verschieben des Verstärkungsmaximums des ersten Zustandes auf $0,987 \text{ eV}$; das des zweiten verlagert sich auf $1,027 \text{ eV}$. Die maximale Verstärkung beträgt in diesem Fall 280 cm^{-1} . Die gesamte Verstärkungsbandbreite ist mit 150 meV im Vergleich zu Quantenfilmsystemen auf Basis von beispielsweise (GaIn)As hoch. Dies kommt, wie bereits im Rahmen der Diskussion der Probe B812/9mm erläutert, durch die Vielfalt an Konfigurationen der an Sb reichen Domänen zustande.

Zum Vergleich sind in Abb. 3.20 die Verstärkungsspektren aller Proben aus der Serie bei gleicher Anregungsleistung von $6,5 \text{ Wmm}^{-2}$ abgebildet, so dass sich der Einfluss der GaAs-Zwischenschicht untersuchen lässt. Fehlt die Schicht

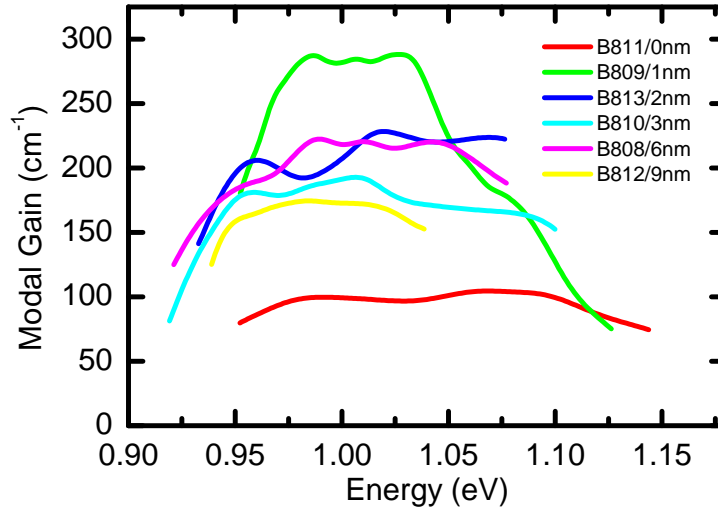


Abbildung 3.20: Verstärkungsspektren der Probenserie B8xx/ynm bei gleicher Anregungsleistung. Die Proben unterscheiden sich in der zusätzlich zum Confinement durch (AlGa)As vorhandenen GaAs-Schicht, welche den Quantenfilm einbettet und in der Dicke y von 0 nm bis 9 nm variiert wurde. Fehlt die Schicht vollständig, findet vermutlich keine Ausbildung der quantenpunktähnlichen Domänen statt und die Verstärkung bleibt auf niedrigem Niveau. Bei einer 1 nm dicken Schicht wird die höchste Verstärkung (280 cm^{-1}) erreicht. Bei größeren Dicken konvergiert die maximale Verstärkung gegen einen Wert von leicht unter 200 cm^{-1} .

gänzlich, so werden nur geringe Verstärkungswerte von unter 100 cm^{-1} erreicht. Die höchste Verstärkung wird bei einer Schichtdicke von 1 nm erreicht. Bei größeren Schichtdicken sinkt die Verstärkung schnell auf leicht unter 200 cm^{-1} , wo sich der Wert stabilisiert.

Die Erklärung für die Abhängigkeit von Verstärkung und Schichtdicke ist vermutlich im veränderten Confinement zu suchen. Durch den Typ-II-artigen Bandabstand der Leitungsbänder von Quantenfilm und GaAs-Barriere sinkt mit zunehmender Dicke der GaAs-Schicht der räumliche Überlapp von Elektronen- und Lochwellenfunktionen, da die Elektronenwellenfunktionen zunehmend außerhalb des Quantenfilms lokalisiert sind. Fehlt die GaAs-Schicht gänzlich, kommt es wahrscheinlich durch die andere Morphologie der Grenzfläche zu $(\text{Al}_{0,25}\text{Ga}_{0,75})\text{As}$ nicht mehr im gleichen Maße zu einer Ausbildung der quantenpunktähnlichen Sb-reichen Domänen und das Material tendiert zu geringerer Verstärkung. Des weiteren wird tendenziell auch der optische Confinementfaktor verschlechtert, da die Confinementschichten zu nah beieinander liegen, um eine gute Ausbildung der

fundamentalen Mode zu erlauben. Klarheit über die Quantenpunktstruktur kann eine weitere Untersuchung der Probenstrukturen mittels Röntgenbeugung oder Transmissionselektronenmikroskopie geben.

3.5.1 Zusammenfassung

Die komplizierte Morphologie der Proben auf Basis von Ga(AsSb) erschwert einen Vergleich mit den Quantenfilmproben. Die quantenpunktartige Struktur steht zumindest bezüglich der Bandbreite und Höhe der Verstärkung den etablierten Quantenfilmstrukturen nicht nach, sondern übertrifft sie zum Teil sogar. Bei den Proben mit zusätzlichem Confinement aus GaAs konnte bei Raumtemperatur eine Verstärkung von maximal 280 cm^{-1} und eine Bandbreite von 150 meV erreicht werden. Dieses Ergebnis lässt vermuten, dass durch Erhöhung der Konzentration von Sb die Emission weiter in den Infrarotbereich verschoben werden kann. Das Materialsystem hat das Potential, den Bereich um $0,5\text{ eV}$ zu erschließen, der für den optischen Richtfunk² interessant ist.

²engl.: Free Space Communication

4 Laser auf Silizium

In Kapitel 2 wurde bereits die Problematik diskutiert, die sich bei Silizium als Lichtemitter ergibt. Der dort vorgestellte Ansatz zielte darauf ab, das ebenso zur vierten Hauptgruppe gehörende Germanium, welches ohne größere Probleme epitaktisch auf Silizium abgeschieden werden kann, als Lasermaterial zu verwenden. Neben den epitaktischen Methoden werden auch Ansätze zu nicht monokristallinen Systemen wie porösem Silizium, Siliziumnanokristallen, Siliziumnanosäulen¹ und Systemen, die Effekte an Siliziumgrenzflächen [Pav03, Ree04, Pav04] ausnutzen, untersucht. Optische Verstärkung konnte bereits in reinen [Pav00] und in mit Erbium dotierten Siliziumnanokristallen [NU06] nachgewiesen werden. In beiden Fällen wurde jedoch keine Laseraktivität erzielt. Lediglich ein auf Ramanprozessen basierender Laser konnte demonstriert werden [Ron05], wobei stets eine starke Anregungslichtquelle benötigt wird, was die technologische Relevanz des Konzepts daher stark einschränkt.

Der hier verfolgte Ansatz sieht das epitaktische Wachstum des etablierten Lasermaterials Ga(NAsP) auf einem Siliziumsubstrat vor. Die Gitterkonstante des quaternären Materials kann durch eine entsprechende Wahl der Konstituenten in gewissem Rahmen eingestellt werden. Insbesondere ist es möglich, die Gitterkonstante einer in $\langle 001 \rangle$ -Richtung orientierten Siliziumoberfläche, wie sie in der Halbleiterindustrie verwendet wird, nachzubilden. Dadurch gelingt die defektfreie Epitaxie dieses Materials auf einem Substrat, dessen Handhabung seit über 30 Jahren in der hochintegrierten Mikroelektronik perfektioniert wurde und welches den weltweiten Halbleitermarkt fast vollständig dominiert. Zu dem Materialsystem selbst wurden bereits umfangreiche Untersuchungen durchgeführt, wobei unter anderem die direkte Natur der Bandlücke [Kun06b], modale Verstärkung [Bor06] und Laseraktivität bei Raumtemperatur durch elektrische Anregung [Kun06a] nachgewiesen wurden.

Die praktische Umsetzung der Integration auf Silizium ist am WZMW² der Philipps-Universität erfolgreich gelungen. Die Probenstruktur, die Details zum

¹engl. „silicon nanopillars“

²Dr. Bernadette Kunert, Dr. habil. Kerstin Volz, Dr. habil. Wolfgang Stolz, **W**issenschaftliches **Z**entrum für **M**aterial**w**issenschaften, Philipps-Universität Marburg

Wachstumsprozess und die Eigenschaften der bei Raumtemperatur gewonnenen Verstärkungsspektren wurden bereits in Kapitel 3 erläutert. Im Folgenden werden die Ergebnisse des Experiments zur Laseraktivität der Probe vorgestellt, womit die praktische Tauglichkeit der Struktur demonstriert wird.

Der experimentelle Aufbau wurde im Rahmen der Strichlängenmethode zu Beginn von Kapitel 3 erläutert. Als Strahlquelle diente das auch für die in Kapitel 2 beschriebenen Experimente verwendete Verstärkersystem. Die Impulsdauer im Bereich von 100 fs führt auch in diesem Material zu einer verringerten dynamischen Absorption durch das Pauliblockieren von Ladungsträgern bei der Absorptionsenergie. Um diesen Effekt zu umgehen, wurde wie auch bei SiGe ein Gitterkompressor benutzt, um den Laserimpuls zeitlich zu verlängern. Die über die Geometrie des Kompressors errechnete Impulsdauer betrug dabei 200 ps und liegt damit auf einer Zeitskala, auf der auch die Rekombination der Ladungsträger in den untersuchten Materialien abläuft.

Die Detektion zeichnet durch den zeitintegrierenden Detektor die gesamte Emission der Probe vom Zeitpunkt der Anregung bis zum Erreichen des Gleichgewichts auf. Aus diesem Grund sind alle im Folgenden präsentierten Spektren als Mittelwert der Emission bei allen Ladungsträgerdichten, die von der Anregung bis zum Gleichgewichtszustand auftreten, zu interpretieren. Insbesondere die Verstärkung wird hierbei unterschätzt und ist daher nicht direkt mit den Werten vergleichbar, die mit der Strichlängenmethode für dieses Materialsystem erreicht wurde.

Der Modendurchmesser des Verstärkersystems ist im Vergleich zu dem Festkörperlaser, der bei der Strichlängenmessung eingesetzt wurde, deutlich größer. Daher genügt es, den Strahl mit einer Zylinderlinse auf die Probe zu fokussieren, ohne ihn vorher aufzuweiten. Entlang des Linienfokus bleibt dadurch eine gewisse Inhomogenität der Intensität zurück, die aber durch die schmalen Probenbarren von maximal $500\text{ }\mu\text{m}$ Breite vernachlässigt werden kann. Die Emission wird wie bei der Strichlängenmethode seitlich aus der Facette der Probe emittiert und mittels eines Spektrometers detektiert.

Um Laseraktivität in der Probe zu ermöglichen, muss das aktive Medium in einen Resonator gebracht werden. Im einfachsten Fall kann die Probe entlang einer Kristallachse gebrochen werden, so dass zwei gerade, planparallele Bruchkanten mit vergleichsweise hoher Qualität, i.e., niedriger Rauigkeit, entstehen. Der strichförmige Fokus des Anregungslasers wird senkrecht zu den Bruchkanten orientiert. Durch den in der Regel hohen Brechungsindexkontrast von Probe (hier $n \approx 3,2$) und Luft beträgt die Reflektivität an den Bruchkanten typischerweise etwa 30 %, sodass ein primitiver Resonator direkt in der Probe gebildet wird.

Übersteigt die Verstärkung bei einem Umlauf die Verluste an den Facetten, so setzt der Laserprozess ein.

Die Emission der Probe gibt mittels mehrerer Charakteristika Aufschluss über das Einsetzen von Laseraktivität, wenn die Laserschwelle erreicht wird. Zum einen findet eine rasche spektrale Verschmälerung der Emission statt, da die Photonenenergien im Verstärkungsmaximum bevorzugt werden. Der Großteil der Ladungsträger rekombiniert nicht mehr spontan unter Emission von Photolumineszenz, sondern wird durch den stimulierten Emissionsprozess aufgebraucht. Zum anderen werden die durch die Geometrie des Resonators vorgegebenen Moden erst durch die Rückkopplung über die Endspiegel, i.e., die dann einsetzende konstruktive bzw. destruktive Interferenz, sichtbar.

Die Ausbildung der Moden in der Emission geschieht bereits leicht unterhalb der Laserschwelle, wenn die Absorption soweit ausgebleicht wurde, dass die Wahrscheinlichkeit für mindestens einen Umlauf im Resonator nicht mehr verschwindend gering ist. Schließlich ist auch die spektral integrierte Intensität der Emission, die ein meist deutliches Schwellverhalten zeigt, ein Indikator für Laseraktivität. Im Folgenden wird die Probe *GaNAsP-2* auf diese drei Merkmale hin untersucht.

4.1 Photolumineszenzspektren

Zunächst wird die spontane Emission der Probe bei verschiedenen Anregungsleistungen untersucht. Die Photolumineszenz fällt bei der Anregung in Strichgeometrie je nach Anregungsleistung leicht anders aus, als bei einer Anregung in einem räumlich stark begrenzten Gebiet, da nicht nur die direkte Photolumineszenz, sondern auch der Teil, der bereits unter Absorption durch einen Teil der Probe propagiert ist, detektiert wird. Bei geringen Anregungsleistungen ist die Absorption der Probe so hoch, dass im Wesentlichen nur die direkt an der Facette erzeugte Photolumineszenz auch detektiert wird. Erst bei höheren Anregungsleistungen, bei denen die Absorption signifikant ausgebleicht wird, tragen auch Raumgebiete der Probe bei, deren Emission eine längere Wegstrecke in der Probe durchlaufen muss. Diese Emissionsbeiträge werden dabei durch die spezifische Form der Absorption bezüglich ihrer spektralen Form verändert, sodass schließlich eine Überlagerung aus verschiedenen spektralen Formen der Photolumineszenz detektiert wird. Erfahrungsgemäß sind die Abweichungen zu den in einem konventionellen Photolumineszenzexperiment gewonnenen Spektren jedoch unbedeutend. Um den Effekt zu minimieren, wurde der Anregungsstrich für die Photolumineszenzmessungen zunächst absichtlich nicht senkrecht zu den Bruchkanten orientiert. Hierdurch

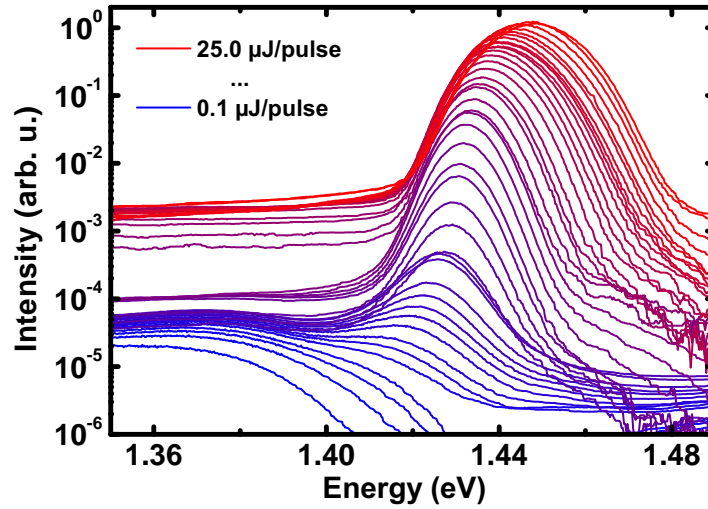


Abbildung 4.1: Photolumineszenzspektren der Probe GaNAsP-2 bei 10 K in logarithmischer Darstellung für einen um zwei Größenordnungen variierenden Bereich von Anregungsleistungen. Die emittierte Leistung variiert um 5 Größenordnungen und erfährt dabei eine Verschiebung der Energie am Maximum von 32 meV. Das erhöhte Rauschen jenseits der PL bei hoher Anregungsleistung kommt durch die geringere Belichtungszeit zustande, die in diesem Fall gewählt werden musste. Für diese Messung wurde ein 300 μm breiter Barren benutzt.

wird die Güte des Resonators drastisch verschlechtert, da die Geometrie keinen geschlossenen Umlauf im Resonator mehr erlaubt.

Abbildung 4.1 zeigt die Photolumineszenz als Funktion der Photonenenergie bei 10 K für einen weiten Bereich von Impulsenergien. Das Maximum des Signals steigt mit Erhöhung der Anregungsleistung um etwa fünf Größenordnungen an und verschiebt sich spektral von anfangs 1,416 eV um 32 meV auf 1,448 eV. Da durch die begrenzte Dynamik des Detektors die Belichtungszeit für die hochangeregte Probe verringert wurde, steigt der Rauschpegel neben dem Emissionsmaximum leicht an. Die sporadisch auftretenden schmalen Spitzen im Spektrum kommen durch kosmische Strahlung zustande, die im Detektor punktuell zur Sättigung einzelner Photodioden führt.

Bei einer Temperatur von 75 K (Abb. 4.2) verschiebt sich die Emission im Vergleich zu 10 K um etwa 35 meV zu niedrigeren Energien, wobei sich die Position des Maximums mit steigender Anregungsleistung hier um 40 meV erhöht. Das Emissionsmaximum erhöht sich wie bei 10 K um etwa fünf Größenordnungen bei

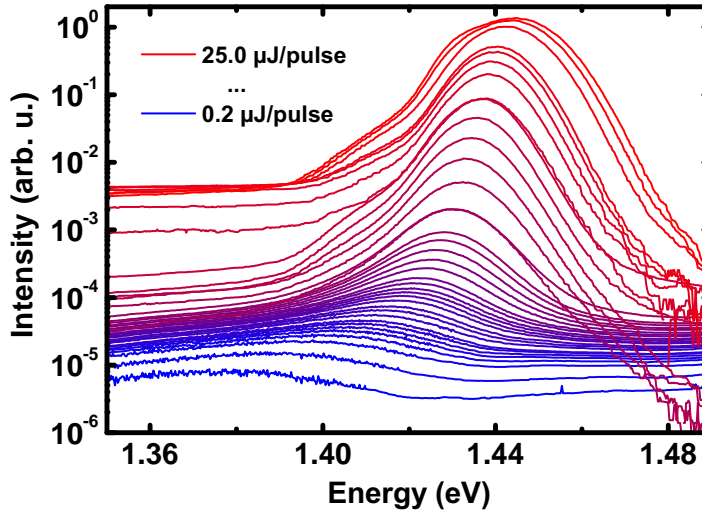


Abbildung 4.2: Photolumineszenzspektren der Probe GaNAsP-2 bei 75 K in logarithmischer Darstellung für einen auf zwei Größenordnungen variierenden Bereich von Anregungsleistungen. Die emittierte Leistung variiert wie bei 10 K (Abb. 4.1) um 5 Größenordnungen, die Verschiebung dabei beträgt 40 meV. Für diese Messung wurde ein 300 μm breiter Barren benutzt.

vergleichbarer Erhöhung der Anregungsleistung. Bei dieser Temperatur ist noch kein offensichtlicher Rückgang der Effizienz erkennbar.

Eine weitere Erhöhung der Temperatur auf 200 K verändert die Charakteristik dramatisch. Wie in Abb. 4.3 ersichtlich, beschränkt sich die Dynamik der Intensität auf nur noch zwei Größenordnungen, was auf die verringerte Effizienz bei dieser Temperatur zurückzuführen ist. Die Verschiebung des Maximums von 1,362 eV auf 1,412 eV ist mit 50 meV leicht größer als bei den vorigen Messungen. Die Gesamtverschiebung im Vergleich zur Messung bei 10 K beträgt etwa 54 meV.

4.2 Modenspektren

Für eine ausreichende Anzahl an Umläufen des Lichtfeldes im Resonator sorgt die Interferenzbedingung

$$\frac{\lambda}{2} \cdot m = n \cdot L \quad (4.1)$$

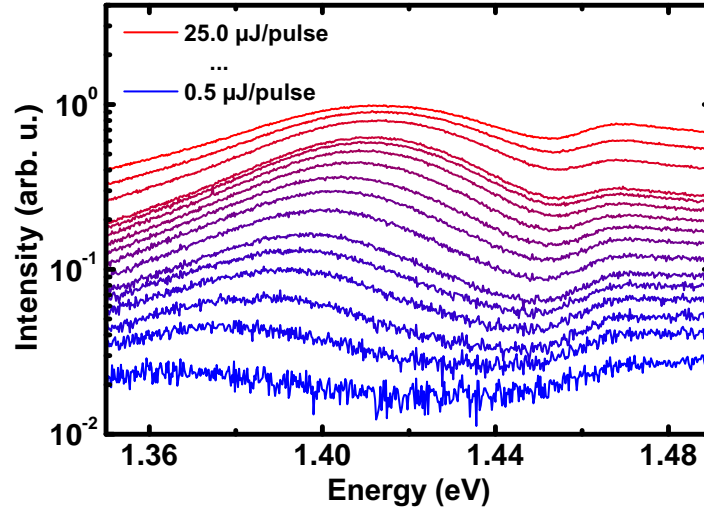


Abbildung 4.3: Photolumineszenzspektren der Probe GaNAsP-2 bei 200 K in logarithmischer Darstellung für einen auf zwei Größenordnungen variierenden Bereich von Anregungsleistungen. Die emittierte Leistung variiert im Gegensatz zu 10 K und 75 K (Abb. 4.1 und 4.2) nur noch um 2 Größenordnungen, was auf eine deutlich verringerte Effizienz und das Ausbleiben einer Schwellcharakteristik hinweist. Die Verschiebung der PL mit steigender Anregungsleistung beträgt 50 meV. Für diese Messung wurde ein 300 μm breiter Barren benutzt.

mit $m \in \mathbb{N}$ dafür, dass sich nur stehende Wellen ausbilden, deren halbe Wellenlänge ein ganzzahliges Vielfaches m der optischen Weglänge $n \cdot L$ beträgt. Der Abstand zweier Moden $\Delta\lambda$ ist von der jeweiligen Wellenlänge λ , der Resonatorlänge L und von dem Brechungsindex des Mediums n abhängig gemäß

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda^2}{2nL}. \quad (4.2)$$

In der Emission der Probe zeigt sich daher bei ausreichender Auflösung des Spektrometers eine kammartige Modenstruktur, sobald die Rückkopplung über die Endspiegel einsetzt.

Diese Eigenschaft der Emission, die ein klares Merkmal für das Einsetzen der Verstärkung ist, lässt sich in Abb. 4.4 in den hochauflösten Modenspektren des für diese Messungen präparierten Laserbarrens mit einer Breite von 500 μm erkennen. Die Spektren wurden im Bereich der Laserschwelle von 3 μJ bis 5 μJ aufgenommen. Das Gitterspektrometer wurde dabei in zweiter Beugungsordnung betrieben, um die nötige Auflösung zu erreichen. Zur Plausibilität wurde nachge-

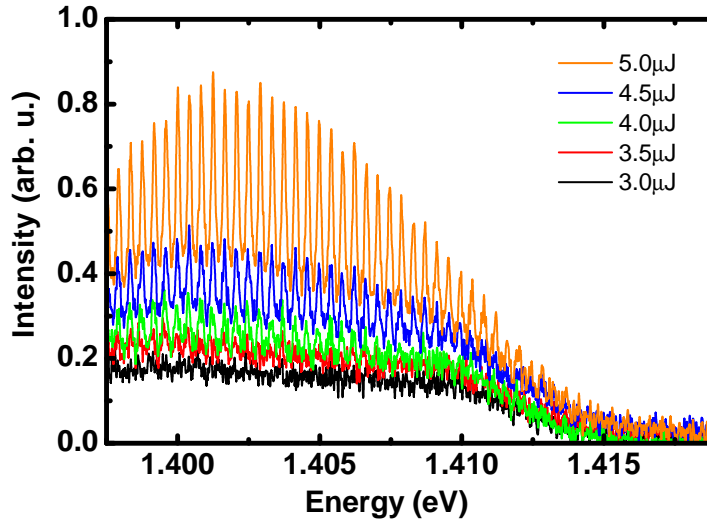


Abbildung 4.4: Modenspektren für einen $500\text{ }\mu\text{m}$ breiten Laserbarren (Probe GaNAsP-2) bei 10 K . Die schnellen Modulationen im Spektrum kommen durch die Interferenzbedingung zustande, die durch den aus der Probe und den beiden Bruchkanten bestehenden Resonator vorgegeben sind. Erst bei einem ausreichenden Ausbleichen des Materials werden mehrere Umläufe im Resonator möglich womit die Interferenzbedingung aus Gl. 4.1 zum Tragen kommt und die Moden mit zunächst geringem Kontrast benachbarter Maxima und Minima sichtbar werden. Mit steigender Anregungsleistung erhöht sich der Kontrast und damit auch die Verstärkung.

prüft, dass der Abstand der Moden über Gl. 4.2 mit der Länge der Probe und einem Brechungsindex von $n = 3,2$ konsistent ist.

Man erkennt bei der niedrigsten Anregungsleistung zunächst keine Modenstruktur im Spektrum, da das Rauschen des Detektors noch überwiegt. Mit steigender Leistung erkennt man zunächst schwach ausgeprägte Moden. Das Kontrastverhältnis benachbarter Maxima und Minima beträgt bei $4\text{ }\mu\text{J}$ etwa 1,5 und steigt auf etwa 2 bei $5\text{ }\mu\text{J}$ an.

Geht man zu höheren Anregungsenergien über, so erhält man die in Abb. 4.5 dargestellten Modenspektren. Der Kontrast der Extrema wächst weiter, was für einen noch höheren Grad an Interferenz spricht und damit für eine höhere Verstärkung.

Sind die Reflektivitäten der Facetten bekannt, so ist es möglich, über die Methode von Hakki und Paoli [Hak75] die Verstärkung aus dem Kontrastverhältnis der

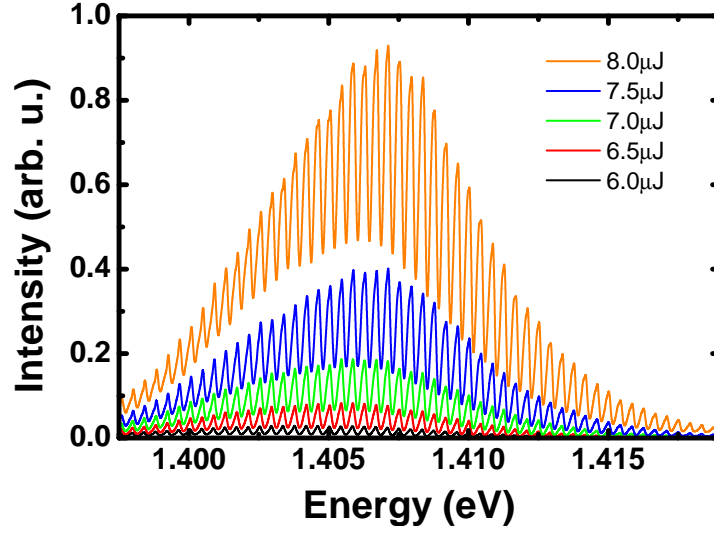


Abbildung 4.5: Modenspektren für einen 500 µm breiten Laserbarren (Probe GaNAsP-2) bei 10 K. Die Anregungsleistung wurde im Vergleich zu den Spektren aus Abb. 4.4 weiter erhöht und erreicht hier 6,0 µJ bis 8,0 µJ. Durch die unter diesen Bedingungen höhere Verstärkung wird ein noch größerer Kontrast zwischen den benachbarten Extrema im Spektrum erreicht.

Extrema auszurechnen. Die modale Verstärkung im Bereich zweier benachbarter Extrema berechnet sich ganz allgemein nach

$$g_{\text{mod}} = \frac{1}{L} \ln \left(\frac{\sqrt{I_{\text{max}}} - \sqrt{I_{\text{min}}}}{\sqrt{I_{\text{max}}} + \sqrt{I_{\text{min}}}} \right) - \frac{1}{2L} \ln R_1 R_2. \quad (4.3)$$

Die Intensität am Maximum wird hier mit I_{max} , die am Minimum mit I_{min} bezeichnet. Die Reflektivitäten der Facetten R_1 und R_2 sind im vorliegenden Fall gleich R , da beidseitig eine Bruchkante vorliegt. Im zweiten Term kann somit das Produkt der Reflektivitäten durch R ersetzt werden, wodurch der Faktor $1/2$ entfällt. Ausgehend von einem Brechungsindex von $n = 3,2$ für das Lasermaterial errechnet man über die Fresnel'schen Formeln bei senkrechter Inzidenz eine Reflektivität von $R = 0,274$.

In Abb. 4.6 ist ein Modenspektrum bei hoher Anregungsleistung zusammen mit dem entsprechenden über die vorgestellte Methode errechneten Verstärkungsspektrum dargestellt. Die roten Punkte stellen die errechnete Verstärkung dar, die durchgezogene Linie dient als optisches Hilfsmittel, um die Daten besser verfolgen zu können. Unterhalb der Bandlücke von 1,407 eV ist das Material transparent, die

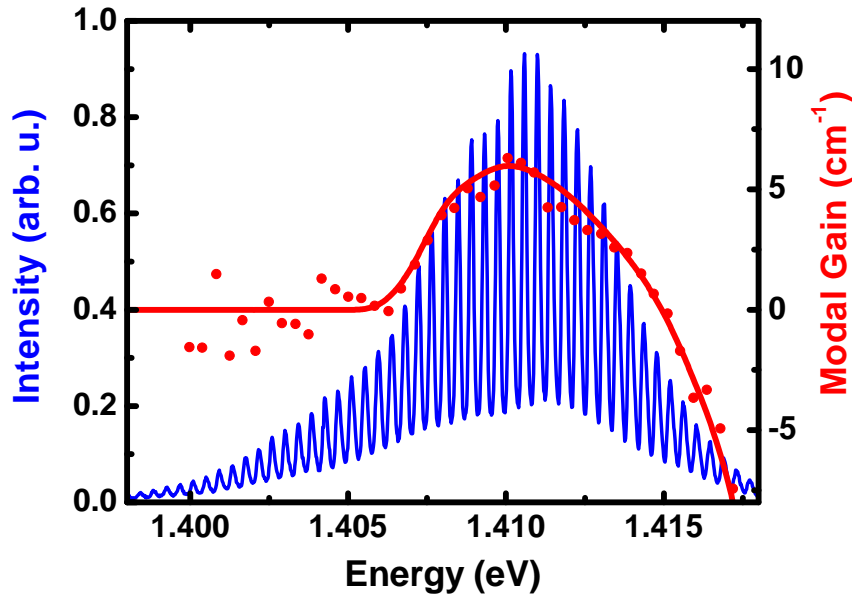


Abbildung 4.6: Berechnung der Verstärkung des 500 μm Barrens (Probe GaNAsP-2) für ein bei sehr hoher Anregungsleistung ermitteltes Modenspektrum. Die Verstärkung nach Hakki und Paoli errechnet sich aus dem Intensitätskontrast zweier benachbarter Extrema in der Emission. Die ermittelten Werte sind durch rote Punkte dargestellt. Der interpretierte Verlauf der Verstärkung wird durch die durchgezogene rote Linie verdeutlicht. Unterhalb der Bandlücke ist das Medium transparent. Bei höheren Energien erkennt man die typische zunächst stark ansteigende Flanke des Verstärkungsspektrums, das Maximum bei etwa 5 cm^{-1} und die schließlich einsetzende starke Absorption.

Verstärkung streut um Null. Oberhalb der Bandlücke bildet sich die typische Form eines Verstärkungsspektrums mit einem Maximalwert von 5 cm^{-1} aus. Ab einer Energie von 1,415 eV fällt der Wert stark ab und geht schließlich in die Absorption über. Die spektrale Form der Verstärkung wird hierbei durch die Rückkopplung über die Facetten verfälscht. Der mit 500, μm bereits relativ lange Resonator hat über den in Abschnitt 3.3 diskutierten Effekt der Ladungsträgerverarmung ebenso einen Einfluss auf die Form des Verstärkungsspektrums.

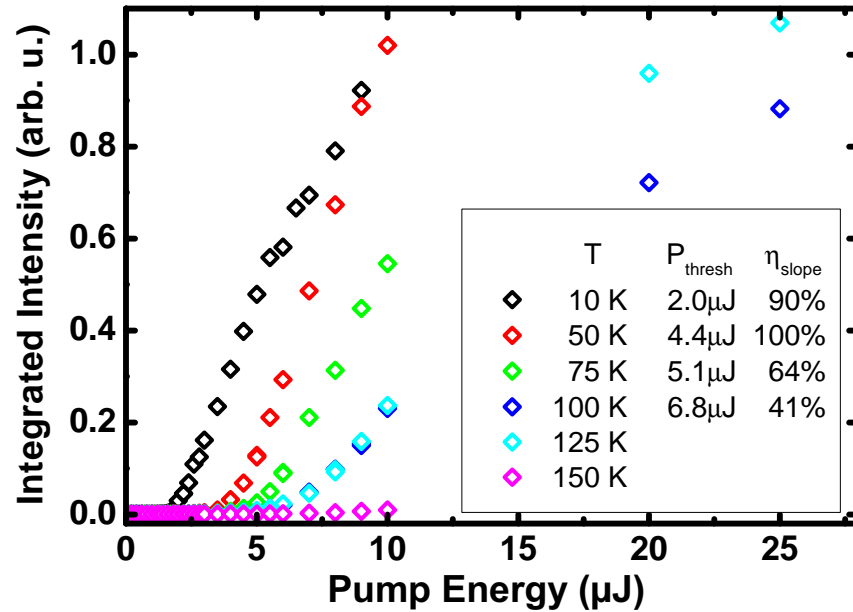


Abbildung 4.7: Emittierte Leistung als Funktion der Anregungsleistung bei einem $500\text{ }\mu\text{m}$ breiten Barren (Probe GaNAsP-2). Für die Tieftemperaturmessungen von 10 K bis 100 K erkennt man die klar ausgeprägte Schwelle, ab der die Laseremission einsetzt. Sie liegt für 10 K bei $2,0\text{ }\mu\text{J}$, für 50 K bei $4,4\text{ }\mu\text{J}$, für 75 K bei $5,1\text{ }\mu\text{J}$ und für 100 K bei $6,8\text{ }\mu\text{J}$. Die differentielle Effizienz des Laserprozesses lässt sich aus der Steigung oberhalb der Schwelle ermitteln, was hier aufgrund der nicht leistungskalibrierten Detektion nur relativ zueinander möglich ist. Die höchste Effizienz wird bei 50 K erreicht, wo Ladungsträger aus lokalisierten Zuständen zusätzlich zur Ladungsträgerpopulation beitragen könnten. Bei 10 K werden 90 %, bei 75 K werden 64 % und bei 100 K werden 41 % der Effizienz der Messung bei 50 K erreicht.

4.3 Schwellverhalten

Als drittes Merkmal der Laseremission ist in Abb. 4.7 die integrierte Ausgangsleistung als Funktion der Anregungsleistung für verschiedene Temperaturen dargestellt. Der für diese Messung benutzte Barren weist eine Breite von $300\text{ }\mu\text{m}$ auf. Die Laserschwelle für die Niedrigtemperaturmessungen beträgt $2,0\text{ }\mu\text{J}$ bei 10 K, $4,4\text{ }\mu\text{J}$ bei 50 K, $5,1\text{ }\mu\text{J}$ bei 75 K und $6,8\text{ }\mu\text{J}$ bei 100 K. Aus der Steigung der Kurven lässt sich die differentielle Effizienz des Prozesses ermitteln, was im vorliegenden Fall aber durch die fehlende Leistungskalibrierung des Detektors

nicht möglich ist. Stattdessen kann eine relative Betrachtung im Vergleich zur höchsten erreichten Effizienz vorgenommen werden. Es fällt zunächst auf, dass die höchste Effizienz nicht bei 10 K erreicht wird, sondern bei 50 K. Dies ist möglicherweise zurückzuführen auf die bei 50 K erhöhte thermische Energie, die die Ladungsträgerdichte leicht erhöht, indem zusätzliche Ladungsträger aus lokalisierten Zuständen mit ins Band gehoben werden. Bei 75 K und 100 K sinkt die Effizienz auf schließlich unter 50 %.

4.4 Zusammenfassung

Die Messdaten zeigen, dass das Materialsystem Laseraktivität aufweist und somit ein gitterangepasster, epitaktisch auf einer Siliziumkristalloberfläche abgeschiedener Laser auf Basis des quaternären, vielseitigen Materials Ga(NAsP) hergestellt und charakterisiert wurde. Durch das an das Kristallgitter des Substrats angepasste Wachstum liegt ein defektfreier Quantenfilm vor, der bereits auf einem nativen Substrat aus GaP durch optische Anregung Laseraktivität gezeigt hat [Bor06]. Auch bei einer Struktur mit elektrischer Anregung [Kun06a] wurde, in diesem Fall sogar bei Raumtemperatur, Laseraktivität festgestellt. Der Transfer dieses Materialsystems auf das fremde Siliziumsubstrat ist mit gleich hoher Kristallqualität gelungen, wie umfangreiche XRD- und TEM-Messungen belegen. Die im Laserbetrieb ermittelte Verstärkung beträgt 5 cm^{-1} . Sie ist geringer als die per Strichlängenmethode ermittelte, was zum einen durch die über die Rückkopplung des Resonators bedingte stärkere stimulierte Emission und zum anderen durch die Impulsanregung hervorgerufen wird.

Für die weitere Entwicklung ist der Fokus zunächst auf die Übertragung der Tieftemperaturergebnisse auf den Bereich der Raumtemperatur und der Temperaturen bis 100 °C gerichtet, um den Laserbetrieb auch in kommerziellen Mikroprozessoren zu ermöglichen. Die Emissionswellenlänge im Bereich von knapp unter 900 nm fällt in einen Bereich, in dem Lichtwellenleiter für kurze Übertragungswege eingesetzt werden, wie sie innerhalb von Gebäuden, zwischen Kleingeräten oder aber direkt auf einem Mikroprozessor vorkommen. Ein weiteres Ziel in der Weiterentwicklung der Wachstumstechnik ist es, in andere Wellenlängenbereiche vorzustößen, um auch langreichweitigere Kommunikation zu ermöglichen.

5 Zusammenfassung

Mit den epitaktisch auf Silizium abgeschiedenen Ga(NAsP)-Quantenfilmen wurde die erste gitterangepasste Laserstruktur auf Silizium hergestellt und charakterisiert, womit ein seit geraumer Zeit verfolgtes Ziel der Optoelektronik in greifbare Nähe gerückt ist. Die Kombination einer leistungsstarken, kohärenten und hocheffizienten Lichtquelle mit dem Materialsystem, das eine seit vier Jahrzehnten anhaltende Optimierung mit exponentiellem Anstieg der Integrationsdichte erfahren hat, birgt ein enormes Potential im Hinblick auf optische Datenverarbeitung. Die Ergebnisse aus Kapitel 3 und 4, in denen die Laseraktivität und das Verstärkungsverhalten der Struktur bei Raumtemperatur untersucht werden, demonstrieren das fortgeschrittene Stadium des Materialdesigns und motivieren weitere Optimierungen. Hierzu zählt unter anderem die Übertragung des bereits bei Ga(NAsP) auf GaP erfolgreich umgesetzten elektrischen Pumpens einer Laserstruktur auf eine auf Silizium aufgebrachte Struktur.

Auf dem Gebiet der Ultrakurzzeitspektroskopie wurde ein Experiment zur Messung der Absorptionsdynamik von Halbleiterstrukturen konzipiert und umgesetzt. Insbesondere die breitbandige Abfragetechnik ließ hierbei einige Schwierigkeiten bezüglich Dispersion und Laufzeitdifferenzen aufkommen, die durch eine stetige Verfeinerung sämtlicher beteiligter Komponenten des Systems überwunden wurden. Hierzu gehören unter anderem der Einsatz möglichst achromatischer Optiken, die Optimierung der mechanischen Stabilität der Verzögerungsstrecke, der Einsatz einer driftkompensierenden Strahlführung, das Design problemspezifisch angepasster elektromechanischer Komponenten, der Aufbau einer mechanisch stabilisierten Weißlichterzeugung und nicht zuletzt auch Modifikationen an Teilen des Lasersystems selbst. Auch auf der Seite der Auswertung der Messdaten wurde ein wesentlicher Beitrag zur Zeitauflösung und zum Dynamikbereich der Messtechnik geleistet. Beide Größen konnten durch die spezifisch zugeschnittenen Algorithmen zur Nachbearbeitung deutlich verbessert werden, so dass die ultraschnelle Dynamik der Absorption auch über den gesamten jeweils gemessenen Spektralbereich, der je nach spektraler Position über 600 nm Breite aufweisen kann, mit einer Zeitauflösung im Bereich von 50 fs konsistent erfasst werden kann. Besonders die zeitlich-spektrale Konsistenz der Methode hebt den experimentellen Aufbau von Oszillatorsystemen ab. Diese sind durch die schmale Bandbreite auch im Fall

mehrerer Messreihen bei verschiedenen Energien nicht geeignet, die breitbandige Dynamik von Umverteilungsprozessen auf ultrakurzen Zeitskalen zu erfassen.

Mit diesem experimentellen Aufbau wurden qualitativ neue Erkenntnisse über die Absorptions- und Ladungsträgerdynamik verschiedener Halbleitermaterialien gewonnen. Durch den Einsatz des Verstärkerlasersystems konnten elektronische Prozesse in Bereichen extremer Ladungsträgerdichten, zum Teil nahe der optischen Zerstörschwelle, erfasst werden. Im Speziellen wurden zunächst Experimente an Quantenfilmen des seit einiger Zeit etablierten Materialsystems (GaIn)As und des verwandten Halbleiters (GaIn)(NAs), der zu der Klasse der verdünnten Nitride gezählt wird, vorgestellt. Bei beiden Materialien wurde die Dynamik der optischen Verstärkung untersucht und im Fall von (GaIn)As mit Rechnungen der mikroskopischen Theorie verglichen. Die sehr gute Korrelierbarkeit zeigt, dass sowohl Experiment als auch Theorie verlässliche, robuste Ergebnisse auf hohem Niveau liefern, die in der Kombination ein leistungsstarkes Analysewerkzeug zu den optischen Eigenschaften von Halbleitern zur Verfügung stellen. Mittels der für dieses Experiment speziell präparierten (GaIn)As-Probe konnte die Ladungsträgerdynamik auf ultraschnellen Zeitskalen untersucht werden. Besonders in diesem Zusammenhang kam die hohe zeitlich-spektrale Konsistenz der Methode zum Tragen, die es erlaubte, die transiente Dynamik der Intra- und Intersubbandstreuungsprozesse im Valenzband des Materials aufzulösen.

Eine deutlich komplexere Situation wurde bei der Germaniumquantenfilmprobe analysiert. Die Ultrakurzzeitmessungen erlaubten es, verschiedene, ineinander greifende Streumechanismen voneinander zu trennen, die auch in diesem Fall durch die unterschiedliche Kopplung der Spinsubsysteme im Valenzband zustande kommen. Messungen bei verschiedenen Temperaturen gaben Aufschluss darüber, welche Rolle das Phononensystem für die Ladungsträgerdynamik einnimmt. Die durch Deformationspotentialstreuung und Streuung der Ladungsträger untereinander bewirkte, kaskadenartige Relaxation der Ladungsträger im Valenzband und im direkten Leitungsband wurde im Detail analysiert. Der breite spektrale Bereich, der durch den optimierten Aufbau erfassbar war, erlaubte es, Ladungsträger mit hoher Überschussenergie zu injizieren, um die Streuung über mehrere Zwischenzustände zu verfolgen. Hierdurch wurde eine bessere Trennung der unterschiedlich schnellen Relaxationskanäle erreicht.

Trotz der indirekten Natur der fundamentalen Bandlücke von Germanium, die in einer Quasigleichgewichtssituation eine Inversion am Γ -Punkt unterbindet, wurde bei der Probe in einer Ultrakurzzeitmessung Verstärkung nachgewiesen. Auch in diesem Fall konnten durch den Vergleich der experimentellen Spektren mit denen der mikroskopischen Theorie, die im Hinblick auf die spezielle Struktur des Leitungsbandes angepasst wurde, detailreiche Erkenntnisse zur Ladungsträgerdy-

namik gewonnen werden. Im Folgeexperiment mit drastisch erhöhter Ladungsträgerdichte konnte der phononenassistierte Mechanismus der Absorption freier Ladungsträger untersucht werden, der zum einen die Verstärkung im Quasigleichgewicht unterbindet, zum anderen aber Ansätze motiviert, wie das Material durch weitere, strukturelle Optimierungen verändert werden müsste. Die Untersuchung der transienten Ladungsträgerdynamik ermöglichte einen neuen Einblick in die Eigenschaften von Germanium, einem bereits ausgiebig charakterisierten Material mit höchst interessanten optischen Eigenschaften. Die Erkenntnisse lassen eine Strategie zur weiteren Verfeinerung der Struktur des Materials im Hinblick auf die Emissionseigenschaften formulieren.

Für die experimentelle Methode der variablen Strichlänge zur Bestimmung der optischen Verstärkung wurde eine ausführliche theoretische Betrachtung durchgeführt, um den Parameterbereich festzulegen, für den die Methode gültige Ergebnisse liefert. Mehrere neue, numerisch robuste Methoden zur Auswertung der Rohdaten wurden entwickelt, die zum einen die Sättigungsproblematik entschärfen (lxl-Methode) und zum anderen die Voraussetzung einer räumlich homogenen Anregung überflüssig machen (difflog-Methode). Die Methoden wurden sowohl anhand von synthetischen Daten auf Rauschanfälligkeit untersucht als auch mittels experimenteller Daten in Bezug auf ihre Praxistauglichkeit charakterisiert. Zusätzlich wurde ein theoretisches Modell entwickelt, mit dem die orts aufgelöste Ladungsträgerverteilung und Verstärkungscharakteristik entlang des Striches berechnet wurde. Die im ersten Teil gewonnenen Erkenntnisse zum Gültigkeitsbereich wurden hierdurch auch theoretisch untermauert. Die der experimentellen Methode inhärente Ladungsträgerverarmung bei langen Strichen wurde im Detail untersucht. Dabei wurde zum einen festgestellt, dass die bei ungünstigen Parametern ermittelte Verstärkung kleiner und spektral breiter als die tatsächliche Verstärkung am Punkt höchster Ladungsträgerdichte ausfällt. Zum anderen konnte gezeigt werden, dass - entgegen der Intuition - die ermittelte Verstärkung unter Umständen sogar deutlich kleiner als die am Punkt kleinster Ladungsträgerdichte vorherrschende ausfällt. Beide Untersuchungen zusammen liefern für eine seit langem etablierte, experimentell simple Methode neue Erkenntnisse über die keineswegs triviale Interpretation der Messdaten und definieren einen Gültigkeitsbereich, der eine weitgehend artefaktfreie Auswertung erlaubt.

Das in diesem Rahmen charakterisierte Materialsystem auf Basis von Ga(AsSb) weist durch die quantenpunktartige Struktur eine spektral sehr breite Verstärkungscharakteristik auf, die auch in Bezug auf den Maximalwert der Verstärkung mit etablierten III-V-Halbleitern wie (GaIn)As konkurrenzfähig ist. Die Struktur unterstreicht, dass gerade Systeme mit einem deutlichen Maß an Unordnung durch die Vielfalt an möglichen Konfigurationen interessante optische

Eigenschaften hervorbringen können, die denen hochgeordneter Systeme qualitativ und quantitativ nicht nachstehen.

6 Anhang

6.1 Halbleiter-Bloch-Gleichungen

Das Fundament der theoretischen Beschreibung der Wechselwirkung zwischen Licht und Materie in Halbleitern bilden die Halbleiter-Bloch-Gleichungen. Sie beschreiben die Kopplung des elektrischen Feldes an das elektronische System des Halbleiters. Diese Gleichungen, die die Grundlage für die theoretischen Betrachtungen in dieser Arbeit waren, sollen im Folgenden kurz vorgestellt und erläutert werden. Die Darstellung beschränkt sich der Lesbarkeit halber auf ein Zweibandmodell, ist jedoch ohne weiteres auf beliebig viele Bänder erweiterbar. Eine umfassende, vollständige Herleitung der Gleichungen findet sich in [Hau04].

Der Hamiltonoperator für das System aus Elektronen und Ionenrümpfen lässt sich formal trennen, so dass man

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{el} + \mathcal{H}_I \quad (6.1)$$

erhält. Im Fall des elektronischen Systems setzt sich der Hamiltonoperator aus kinetischer und potentieller Energie wie folgt zusammen:

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{el} &= \sum_{\vec{k}} \left(E_{c,\vec{k}} \cdot a_{c,\vec{k}}^\dagger a_{c,\vec{k}} + E_{v,\vec{k}} \cdot a_{v,\vec{k}}^\dagger a_{v,\vec{k}} \right) \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{\vec{k}, \vec{k}', \vec{q} \neq 0} V_{\vec{q}} \left(a_{c,\vec{k}+\vec{q}}^\dagger a_{c,\vec{k}'-\vec{q}}^\dagger a_{c,\vec{k}'} a_{c,\vec{k}} + a_{v,\vec{k}+\vec{q}}^\dagger a_{v,\vec{k}'-\vec{q}}^\dagger a_{v,\vec{k}'} a_{v,\vec{k}} \right. \\ &\left. + 2a_{c,\vec{k}+\vec{q}}^\dagger a_{v,\vec{k}'-\vec{q}}^\dagger a_{v,\vec{k}'} a_{c,\vec{k}} \right). \end{aligned} \quad (6.2)$$

Die Indizes v und c stehen dabei für das Valenz- beziehungsweise das Leitungsband des Systems. Die Erzeuger und Vernichter der quantenmechanischen Zustände werden mit a^\dagger und a dargestellt. Die hier gewählte Notation des kombinierten Wellenvektors \vec{k} beinhaltet der Einfachheit halber sowohl den eigentlichen

Wellenvektor als auch den Spin des Elektrons. Letzterer muss dadurch nicht explizit mitgeschrieben werden. Die Dispersionsrelationen der beiden Bänder sind durch $E_{c,\vec{k}}$ und $E_{v,\vec{k}}$ gegeben. Je nachdem, in welchem Ladungsträgerdichtebereich die Rechnung durchgeführt wird, können die Relationen durch eine allgemeine Bandstrukturberechnung gewonnen werden oder durch die Näherung der effektiven Masse approximiert werden. Das Coulombmatrixelement $V_{\vec{q}}$ schließlich birgt das Coulombpotential in sich.

Der Hamiltonoperator für das verbleibende Ionenrumpfsystem beschreibt die Interbanddipolkopplung an das elektrische Feld E . Mit der Abkürzung h.c. für den hermitesch konjugierten Anteil und dem Dipolmatrixelement d_{cv} zwischen Valenz- und Leitungsband ergibt sich

$$\mathcal{H}_I = - \sum_{\vec{k}} E(t) \left(a_{c,\vec{k}}^\dagger a_{v,\vec{k}} d_{cv} + \text{h.c.} \right). \quad (6.3)$$

Die Repräsentation des vollständigen Hamiltonoperators \mathcal{H} im Elektron-Loch-Bild wird schließlich noch über die Ersetzung

$$\begin{aligned} \beta_{-\vec{k}}^\dagger &= a_{v,\vec{k}} \\ \alpha_{\vec{k}}^\dagger &= a_{c,\vec{k}}^\dagger \end{aligned} \quad (6.4)$$

vereinfacht. Durch die hier schon durch das Symbol gegebene Verknüpfung des Operators mit dem zugehörigen Band ist es nicht mehr nötig, die Indizes für Valenz- und Leitungsband mitzuschreiben. In voller Form lautet der Elektronen-Loch-Hamiltonoperator somit

$$\begin{aligned} \mathcal{H} &= \sum_{\vec{k}} \left(E_{c,\vec{k}} \alpha_{\vec{k}}^\dagger \alpha_{\vec{k}} + E_{v,\vec{k}} \beta_{-\vec{k}}^\dagger \beta_{-\vec{k}} \right) \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{\vec{k}, \vec{k}', \vec{q} \neq 0} V_{\vec{q}} \left(\alpha_{\vec{k}+\vec{q}}^\dagger \alpha_{\vec{k}'-\vec{q}}^\dagger \alpha_{\vec{k}'} \alpha_{\vec{k}} \right. \\ &+ \left. \beta_{\vec{k}+\vec{q}}^\dagger \beta_{\vec{k}'-\vec{q}}^\dagger \beta_{\vec{k}'} \beta_{\vec{k}} - 2 \alpha_{\vec{k}+\vec{q}}^\dagger \beta_{\vec{k}'-\vec{q}}^\dagger \beta_{\vec{k}'} \alpha_{\vec{k}} \right) \\ &- \sum_{\vec{k}} E(t) \left(d_{cv} \alpha_{\vec{k}}^\dagger \beta_{-\vec{k}}^\dagger + \text{h.c.} \right). \end{aligned} \quad (6.5)$$

Die für die Charakterisierung des Systems relevanten Größen wie Ladungsträgerdichte und Polarisation werden über die quantenmechanischen Erwartungswerte wie folgt gewonnen:

$$\begin{aligned}
 n_{e,\vec{k}}(t) &= \langle \alpha_{\vec{k}}^\dagger \alpha_{\vec{k}} \rangle \\
 n_{h,\vec{k}}(t) &= \langle \beta_{-\vec{k}}^\dagger \beta_{-\vec{k}} \rangle \\
 P_{\vec{k}}(t) &\equiv P_{he}(\vec{k}, t) = \langle \beta_{-\vec{k}} \alpha_{\vec{k}} \rangle .
 \end{aligned} \tag{6.6}$$

Die Zeitableitung der Erwartungswerte wird über die Heisenberg-Bewegungsgleichungen ermittelt. Dabei wird die Hartree-Fock-Näherung durchgeführt, um die dabei entstehende rekursive Zirkelbeziehung aufzulösen. Für den genauen Gang der Näherung sei auf [Hau04] verwiesen. Die bei der Umformung durchgeführte formale Zerlegung des Erwartungswerts in einen Hartree-Fock-Term und den Term des Fehlers zur exakten Lösung ergibt nach einigen Vereinfachungen schließlich die Halbleiter-Bloch-Gleichungen:

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial P_{\vec{k}}}{\partial t} &= -i \left(e_{e,\vec{k}} + e_{h,\vec{k}} \right) P_{\vec{k}} - i \left(n_{e,\vec{k}} + n_{h,\vec{k}} - 1 \right) \omega_{R,\vec{k}} + \left. \frac{\partial P_{\vec{k}}}{\partial t} \right|_{scatt} \\
 \frac{\partial n_{e,\vec{k}}}{\partial t} &= -2\Im \left(\omega_{R,\vec{k}} P_{\vec{k}}^* \right) + \left. \frac{\partial n_{e,\vec{k}}}{\partial t} \right|_{scatt} \\
 \frac{\partial n_{h,\vec{k}}}{\partial t} &= -2\Im \left(\omega_{R,\vec{k}} P_{\vec{k}}^* \right) + \left. \frac{\partial n_{h,\vec{k}}}{\partial t} \right|_{scatt} .
 \end{aligned} \tag{6.7}$$

Die Ankopplung dieser Polarisations- und Dichtegleichungen an das elektrische Feld geschieht über die verallgemeinerte Rabi-Frequenz gemäß

$$\omega_{R,\vec{k}} = \frac{1}{\hbar} \left(d_{cv} E + \sum_{\vec{q} \neq \vec{k}} V_{|\vec{k}-\vec{q}|} P_{\vec{q}} \right) . \tag{6.8}$$

Dabei bezeichnet $V_{|\vec{k}-\vec{q}|}$ das Coulombmatrixelement und $P_{\vec{q}}$ die Polarisation. Der erwähnte Fehlerterm, hier jeweils der letzte Summenterm in jeder der Gleichungen in 6.7, wird als Streuterm interpretiert. Nur über diesen Term können Umverteilungsprozesse des Elektronensystems erfolgen. Seine Berechnung ist im Allgemeinen sehr aufwendig und bedarf weiterer Näherungen. Im einfachsten Fall,

ohne Berücksichtigung von Streuung zwischen den Zuständen, kann er proportional zur Dichte angesetzt werden. Im Fall niedriger Dichten ermöglicht diese Wahl eine Linearisierung der Gleichungen und man erhält ein exponentielles Verhalten der Dichte nach einer punktuellen Anregung. Diese Näherung stellt einen der wenigen analytischen Ansätze dar. Für reale physikalische Systeme werden die Streuterme zu komplex, um analytisch gelöst werden zu können. Im Allgemeinen, nicht-trivialen Fall sind daher nur noch numerische Lösungen möglich, wie sie auch bei den Rechnungen zur Absorption in Kapitel 3 angewendet wurden. Die Problemkomplexität als Funktion der Auflösung im Impulsraum ist dabei mindestens von der Größenordnung $O(N^2)$, für Rechnungen mit Coulombwechselwirkung mindestens $O(N^3)$.

6.2 Selbstphasenmodulation

Das zur Weißlichterzeugung genutzte Phänomen der Selbstphasenmodulation tritt in Medien mit stark intensitätsabhängigem Brechungsindex auf. Der Brechungsindex n wird dabei gemäß

$$n(I) = n_0 + n_2 \cdot I \quad (6.9)$$

durch die Intensität I des Lichtfeldes über den Kerrkoeffizienten n_2 verändert. Für die folgende Betrachtung, die die Selbstphasenmodulation eines Laserimpulses zum Gegenstand hat, soll die Intensität des Lichtfeldes sich durch ein Gauß'sches Profil beschreiben lassen. Zur Vereinfachung soll der Laserimpuls senkrecht zu seiner Ausbreitungsachse eine unendlich ausgedehnte räumlich homogene Intensitätsverteilung aufweisen. An einem festen Punkt im Medium ergibt sich die Intensitätsabhängigkeit

$$I(t) = I_0 \cdot e^{-\frac{t^2}{\tau^2}}. \quad (6.10)$$

Beim Passieren des Impulses ändert sich der lokale Brechungsindex, was zu einer endlichen Ableitung

$$\frac{dn(I)}{dt} = -\frac{2n_2 I_0 t}{\tau^2} \cdot e^{-\frac{t^2}{\tau^2}} \quad (6.11)$$

führt. Die instantane Phase

$$\Phi(t) = \omega_0 t - \frac{2\pi}{\lambda_0} \cdot n(I)L, \quad (6.12)$$

welche durch die Zentralfrequenz ω_0 , die Zentralwellenlänge im Vakuum λ_0 und die zurückgelegte Strecke L im Medium gegeben ist, bestimmt über ihr zeitliches Differential die instantane Frequenz des Impulses gemäß

$$\omega(t) = \frac{d\Phi(t)}{dt} = \omega_0 + \frac{4\pi L n_2 I_0}{\lambda_0 \tau^2} \cdot t \cdot e^{-\frac{t^2}{\tau^2}}. \quad (6.13)$$

In Abb. 6.1 ist das Intensitätsprofil schematisch im oberen Teil als Funktion der Zeit dargestellt. Im unteren Teil ist die resultierende instantane Frequenz aufgetragen, die um $\pm\Delta\omega$ um die Zentralfrequenz ω_0 herum variiert und das Frequenzspektrum des Impulses somit aufweitet.

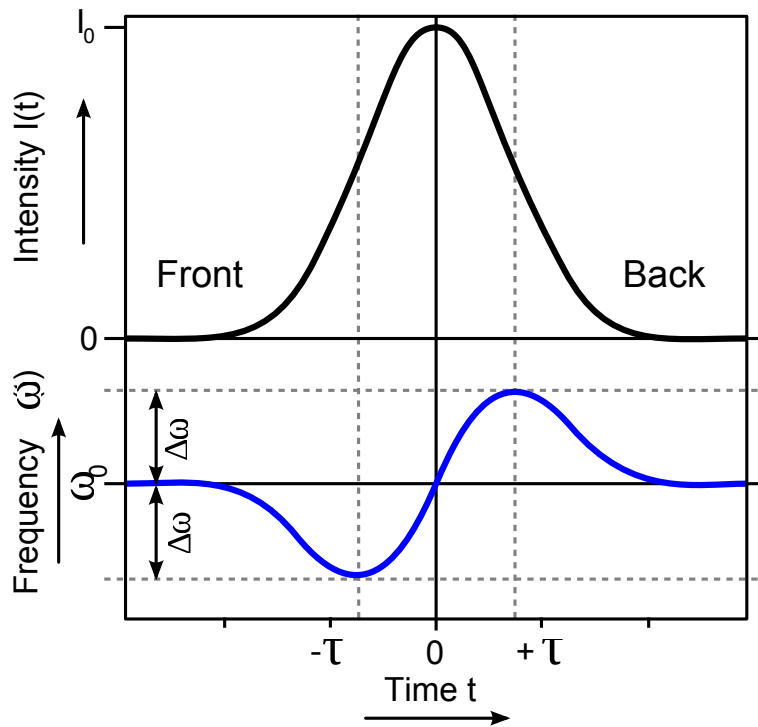


Abbildung 6.1: Schema zur Selbstphasenmodulation. Durch den nichtlinearen Kerr-Effekt liegt im Allgemeinen ein von der Intensität des elektrischen Feldes abhängiger Brechungsindex vor. Dieser führt insbesondere zu einer Veränderung des Brechungsindex im zeitlich zentralen Bereich des oben abgebildeten Laserimpulses. Die instantane Frequenz des Impulses (unten) erfährt eine entsprechende Verschiebung über die Position im Impuls, die zu einer spektralen Aufweitung führt.

Obwohl die Variation der Zentralfrequenz allein noch keine Vergrößerung der zeitlichen Ausdehnung des Impulses herbeiführt, tritt in einem realen Medium

durch den in der Regel frequenzabhängigen Brechungsindex eine für jede spektrale Komponente des Impulses verschiedene Laufzeitdifferenz auf, die als Chirp¹ bezeichnet wird.

6.3 Absorptionsmessung unter Einbeziehung der Reflexion

Die Einbeziehung von Reflexionsänderungen und absoluten Reflexionsverlusten an der Grenzfläche der Probe zur Luft erfordert sowohl Änderungen am experimentellen Aufbau als auch der Messmethode und der Auswertung der Daten. In Abb. 6.2 ist dargestellt, wie die Reflexion der hier senkrecht zum Strahl ausgerichteten Probe über zwei Strahlteiler ins Spektrometer geführt wird, um dort vermessen zu werden. Elektromechanische Verschlüsse erlauben hier das selektive Schalten von Anregungsstrahl, transmittiertem Strahl und reflektiertem Strahl.

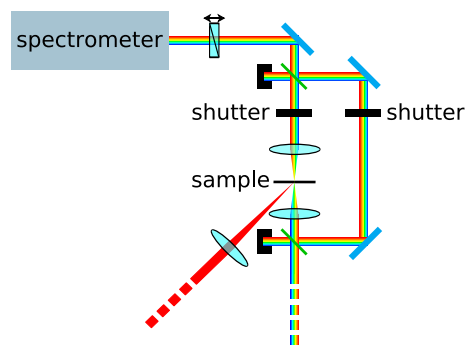


Abbildung 6.2: *Experimenteller Aufbau zur Anrege-Abfrage-Spektroskopie mit Berücksichtigung von Reflexionsverlusten. Die Abbildung zeigt die Strahlführung des Weißlichts im Bereich der Probe, auf die das Weißlicht in dieser Konfiguration senkrecht auftrifft. Zusätzlich zum transmittierten Anteil wird auch der reflektierte Anteil ins Spektrometer geleitet, wobei er dabei nach der Reflexion an der Probe über den ersten Strahlteiler ausgekoppelt wird, um dann über den zweiten Strahlteiler auf die gleiche Achse wie der transmittierte Strahl gebracht zu werden. Zwei elektromechanische Verschlüsse ermöglichen die selektive Detektion eines der beiden Strahlen.*

¹engl. to chirp = zwischern, in Anlehnung an die oft linear ansteigende Zentralfrequenz eines Laserimpulses, die auf Akustik übertragen entsprechend klingen würde

Die Berechnung der differentiellen Absorption erfolgt unter Einbeziehung der Reflexionskoeffizienten γ_0 für den Gleichgewichtsfall und γ_{pump} für die angeregte Probe. Die von der Probe reflektierten Messgrößen werden zur besseren Übersicht mit R_i bezeichnet, die transmittierten mit T_i . Die Intensität des Weißlichts vor der Probe wird mit I_{white} bezeichnet. Alle eine Lichtintensität bezeichnenden Größen sind Funktionen der Energie, so dass diese Abhängigkeit zur Vereinfachung nicht explizit mitgeschrieben wird. Mit dieser Notation erhält man für die durch die nicht angeregte Probe transmittierte Intensität T_{probe} :

$$T_{probe} = I_{white} \cdot (1 - \gamma_0) \cdot e^{-\alpha_0 L} \cdot (1 - \gamma_0). \quad (6.14)$$

Hierbei wurden die einzelnen Schwächungsfaktoren in der Reihenfolge ihres physikalischen Inkrafttretens beim Passieren der Probe aufgeführt. Das Weißlicht wird an der Probenoberfläche gemäß des Reflexionskoeffizientens γ_0 reflektiert, in der Probe absorbiert und beim Austreten aus der Probe nochmals reflektiert. Mehrfachreflexionen wurden nicht berücksichtigt. Analog hierzu errechnet sich die Transmission für die angeregte Probe:

$$T_{pumpprobe} = I_{white} \cdot (1 - \gamma_{pump}) \cdot e^{-(\alpha_0 + \Delta\alpha)L} \cdot (1 - \gamma_{pump}). \quad (6.15)$$

Der durch die in der Probe erzeugten Ladungsträger veränderte Reflexionskoeffizient wird mit γ_{pump} bezeichnet, der Absorptionskoeffizient wird durch den additiven Korrekturterm $\Delta\alpha$ modifiziert. Löst man beide Gleichungen nach dem Exponenten des Absorptionsterms auf und subtrahiert diese, so erhält man die differentielle Absorption

$$\Delta\alpha L = \ln \left(\frac{T_{probe}}{T_{pumpprobe}} \right) + 2 \cdot \ln \left(\frac{1 - \gamma_{pump}}{1 - \gamma_0} \right). \quad (6.16)$$

Die Bestimmung der Reflexionskoeffizienten erfordert eine Kalibrierung des Systems auf die Verluste des Reflexionsstrahlengangs. Zu diesem Zweck wird anstatt der Probe ein hochreflektierender Spiegel in den Fokus des Weißlichtes gebracht. Das reflektierte Licht erleidet entlang des Reflexionsstrahlengangs die gleichen Verluste wie alle anderen reflexionsbezogenen Größen, die auf diesem Weg gemessen werden. Somit ist es möglich, auf die absolute Reflexion der eigentlichen Probe zurückzurechnen und den verfälschenden Einfluß der Strahlteiler und Spiegel zu eliminieren. Die so ermittelte Intensität des vom Spiegel reflektierten Lichts R_{mirror} fließt direkt in die Berechnung der Reflexionskoeffizienten ein:

$$\gamma_0 = \frac{R_{probe}}{R_{mirror}} \quad (6.17)$$

$$\gamma_{pumpprobe} = \frac{R_{pumpprobe}}{R_{mirror}}. \quad (6.18)$$

Die Reflexionsspektren R_{probe} und $R_{pumpprobe}$ werden bestimmt, indem das von der Probe reflektierte Weißlicht bei blockiertem bzw. geöffnetem Anregestrahle gemessen wird. Sämtliche in dieser Betrachtung angesprochenen Typen von Spektren werden in einem realen Messaufbau durch verschiedene Einflüsse verfälscht. Diese Größen, die bis jetzt implizit als vernachlässigbar betrachtet wurden, beinhalten stets das thermische Rauschen der Kamera ohne Lichteinfall, aber im Fall der Anregung auch das Streulicht und die Photolumineszenz, die von der Probe ausgehen. Insgesamt erhält man unter Einbeziehung dieser Faktoren und nach Vereinfachung die Beziehung

$$\begin{aligned} \Delta\alpha L = & \ln\left(\frac{T_{probe} - T_{noise}}{T_{pumpprobe} - T_{pump}}\right) \\ & + 2 \cdot \ln\left(\frac{R_{mirror} + R_{pump} - R_{pumpprobe} - R_{noise}}{R_{mirror} - R_{probe}}\right). \end{aligned} \quad (6.19)$$

Die aus formalen Gründen verschieden bezeichneten Hintergrundspektren T_{noise} und R_{noise} sind identisch, da sie beide bei blockierten Anrege- und Abfragestrahlen gewonnen werden und nur das Kamerarauschen und eventuell vorhandenes Hintergrundlicht im Labor beinhalten. Um die Photolumineszenz und das Streulicht der Anregung miteinzubeziehen, werden die Spektren T_{pump} und R_{pump} aufgenommen. Sie enthalten intrinsisch die Anteile T_{noise} und R_{noise} , welche in den entsprechenden Termen in Gleichung 6.19 somit nicht gesondert abgezogen werden. Um zur in Abschnitt 2.1.5 vorgestellten, vereinfachten Form der differentiellen Absorption zu gelangen, genügt es, die Intensität sämtlicher Reflexionssignale mit Ausnahme der des Referenzspiegels auf Null zu setzen. Die zweite Logarithmusfunktion verschwindet und man erhält Gleichung 2.4.

6.4 Zeitlicher Verlauf des Ferminiveaus (Probe 12934)

Um die Lage des Ferminiveaus bei Probe 12934 genauer abzuschätzen, werden vier der Spektren mit Modellspektren verglichen, die durch eine an die Methode von Kubo, Martin und Schwinger angelehnte Schätzung zustande kommen. Hierbei wird das lineare Absorptionsspektrum mit einer Fermiverteilung multipliziert und durch Variation von Temperatur und Ferminiveau an die experimentell gewonnene differentielle Absorption angepasst. Da das chemische Potential im hohen Maß die relativen Höhen der Maxima der drei Zustände beeinflusst und die Temperatur im Wesentlichen die Flankensteilheit im hochenergetischen Teil

des Spektrums bestimmt, lassen sich die Parameter beim Optimierungsprozess gut trennen. Das Ergebnis der Schätzung ist im Einsatz in Abb. 6.3 dargestellt. Das Ferminiveau weist, wie schon diskutiert, einen superlinearen Verlauf auf. Eine direkte Ableitung des Rekombinationsverhaltens ist allerdings nicht möglich, da die Zustandsdichte in hohem Maße mitbestimmt, wie viele Ladungsträger sich für ein festes Ferminiveau im Leitungsband aufhalten. Obwohl die Übereinstimmung des Modells mit den differentiellen Spektren gut ausfällt, darf die Methode nur als grobe Abschätzung angesehen werden, da von einem im Einteilchenbild gewonnenen Merkmal des Materials, dem linearen Absorptionsspektrum, auf ein stark wechselwirkendes System, den angeregten Halbleiter, geschlossen wird. Für die Temperatur werden tendenziell zu hohe Werte ermittelt, was durch die auch in

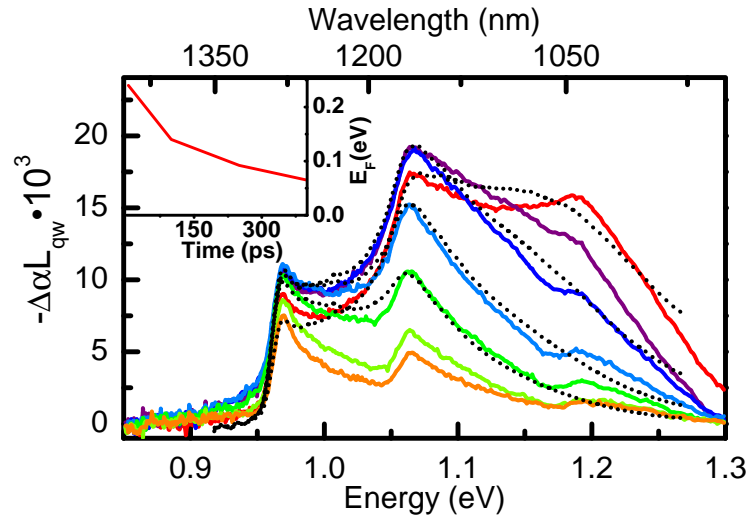


Abbildung 6.3: Abkühl- und Rekombinationsvorgang in $(\text{GaIn})(\text{NAs})$ bei hoher Anregungsphotonendichte von $9 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ bei $1,354 \text{ eV}$ (915 nm). Von oben (rot) nach unten (orange) sind differentielle Absorptionsspektren zu Verzögerungen von 5 ps , 50 ps , 100 ps , 250 ps , 400 ps , 650 ps und 850 ps aufgetragen. Die flachere Form des hochenergetischen Ausläufers bei 5 ps Verzögerung ist auf eine noch erhöhte Temperatur der Elektronenverteilung zurückzuführen, die durch die hohe Überschussenergie der Anregung zustande kommt. Über eine modifizierte Version der Kubo-Martin-Schwinger-Relation generierte Spektren dienen dem Abschätzen des Ferminiveaus, dessen Verlauf im Einsatz oben links gezeigt ist. Die zugehörigen Spektren sind als gepunktete schwarze Linien eingezeichnet. Die über einen weiten Zeitraum (400 ps) nahezu konstante Signalstärke am Grundzustand bei $0,97 \text{ eV}$ begründet sich durch Nachfüllen von Elektronen aus höheren Zuständen.

[Col89] berichtete Stoßverbreiterung zustande kommen kann. Aus diesem Grund wird auf eine Diskussion des Temperaturverlaufs verzichtet.

6.5 Beispiel für stark ausgeprägte kohärente Oszillationen an GaAs (Probe I13847)

In Abb. 6.4 ist die differentielle Absorption bei einer Temperatur von 4 K für eine Multiquantenfilmprobe aus GaAs dargestellt. Die zehn Quantenfilme der Probe sind in Barrieren aus (AlGa)As eingebettet. Um die ultraschnelle Dynamik messen zu können, wurde wie auch bei der (GaIn)As-Probe in Abschnitt 2.2.5 das Substrat entfernt. Die kohärenten Oszillationen, die bei den Germaniumquantenfilmen in Abschnitt 2.3.3 beobachtet wurden, sind hier besonders deutlich ausgeprägt. Für die Messung im linken Teil der Abbildung wurde die Probe resonant bei 1,533 eV (808 nm) angeregt. Bei positiven Zeitverzögerungen erkennt man die beiden fundamentalen Übergänge aus den Lochbändern in den ersten Leitungsbandzustand als vertikale gelb-rötlich gefärbte Linien. Vor der Zeitnull sind die starken Modulationen im Spektrum sichtbar, deren Wellenlänge zum Zeitnullpunkt hin divergiert. Im Experiment im rechten Teil der Abbildung liegt eine stark nichtresonante Anregung weit unterhalb der Bandlücke vor. Die Photonenenergie beträgt mit 0,489 eV (2530 nm) lediglich ein Drittel der Bandlücke. Die kohärenten Oszillationen sind hier noch deutlicher ausgeprägt, unter anderem weil, wie bei positiven Zeitverzögerungen ersichtlich, kaum Ladungsträger generiert werden und somit ein geringeres Ausbleichen der Absorption vorliegt.

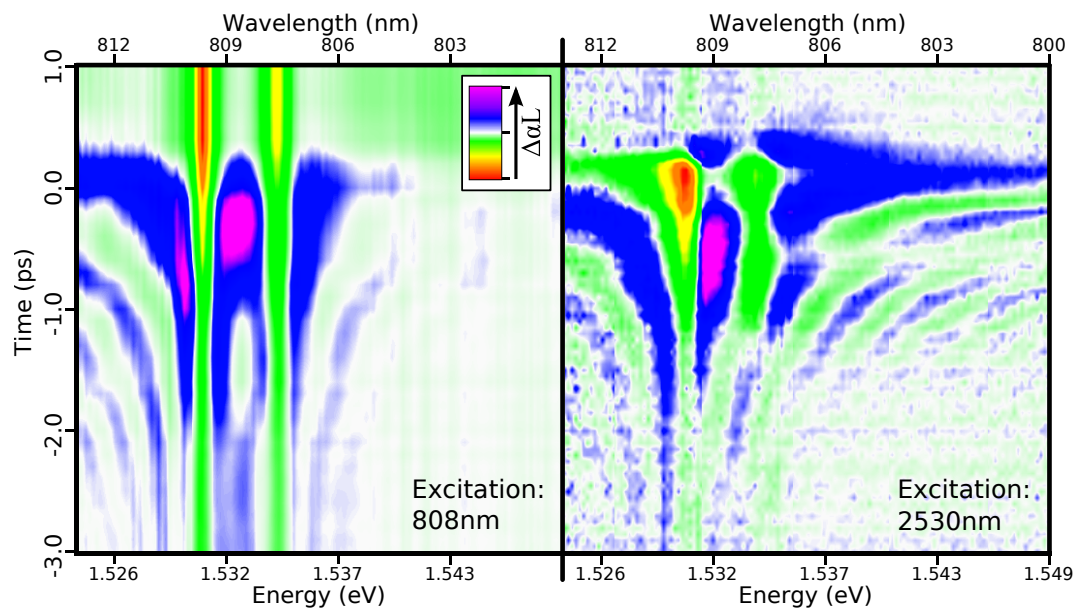


Abbildung 6.4: Stark ausgeprägte kohärente Oszillationen an einer GaAs-Quantenfilmstruktur bei einer Temperatur von 4 K. Im linken Teil ist die differentielle Absorption bei resonanter Anregung (1,533 eV, 808 nm) abgebildet, rechts für stark nichtresonante Anregung (0,489 eV, 2530 nm)). In beiden Fällen sind bei negativen Zeiten deutlich ausgeprägte Modulationen über bis zu fünf Perioden erkennbar, deren Wellenlänge zum Zeitnullpunkt hin divergiert.

Literaturverzeichnis

- [Alt86] M. ALTARELLI. *Semiconductor Superlattices and Heterojunctions*. Springer Berlin (1986).
- [Bas88] G. BASTARD. *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*. Les Ulis Cedex: Les Éd. de Physique (1988).
- [Büc07] C. BÜCKERS, G. BLUME, A. THRÄNHARDT, C. SCHLICHENMAIER, P. J. KLAR, G. WEISER, S. W. KOCH, J. HADER, J. V. MOLONEY, T. J. C. HOSEA, S. J. SWEENEY, J.-B. WANG, S. R. JOHNSON und Y.-H. ZHANG. *Microscopic electroabsorption line shape analysis for Ga(AsSb)/GaAs heterostructures*. J. Appl. Phys. **101**, 033118 (2007).
- [Bin91] R. BINDER, I. GALBRAITH und S. W. KOCH. *Theory of band-edge optical nonlinearities in type-I and type-II quantum-well structures*. Phys. Rev. B **44**, 3031 (1991).
- [Bla02] J. BLAKE. *Encyclopedia of Physical Science and Technology*, Band 14, S. 805. Academic Press, 3. Auflage (2002).
- [Blo00] P. BLOOD. *On the dimensionality of optical absorption, gain, and recombination in quantum-confined structures*. J. of Quantum Electronics **36**, 354 (2000).
- [Bor06] S. BORCK, S. CHATTERJEE, B. KUNERT, K. VOLZ, W. STOLZ, J. HEBER, W. RÜHLE, N. GERHARDT und M. HOFMANN. *Lasing in optically pumped Ga(NAsP)/GaP heterostructures*. Appl. Phys. Lett. **89**, 031102 (2006).
- [Cho97] W. W. CHOW, P. M. SMOWTON, P. BLOOD, A. GIRNDT, F. JAHNKE, und S. W. KOCH. *Comparison of experimental and theoretical GaInP quantum well gain spectra*. Appl. Phys. Lett. **71**, 157 (1997).
- [Cho99] W. W. CHOW und S. W. KOCH. *Semiconductor-Laser Fundamentals*. Springer, Berlin (1999).

- [Col54] C. L. COLLINS und P. Y. YU. *Generation of nonequilibrium optical phonons in GaAs and their application in studying intervalley electron-phonon scattering*. Phys. Rev. B **30**, 4501 (1954).
- [Col89] J. COLLET, W. RÜHLE, M. PUGNET, K. LEO und A. MILLION. *Electron-hole plasma dynamics in CdTe in the picosecond regime*. Phys. Rev. B **40**, 12296 (1989).
- [Dan95] Y. DANKNER. *Optical gain and saturation of photoexcited type-II superlattice*. Solid State Comm. **93**, 707 (1995).
- [Dou04] J. DOUGLAS. *Si/SiGe heterostructures: from material and physics to devices and circuits*. Semicond. Sci. Technol. **19**, R75 (2004).
- [Dum70] W. P. DUMKE, M. R. LORENZ und G. D. PETTIT. *Intra- and Interband Free-Carrier Absorption and the Fundamental Absorption Edge in n-Type InP*. Phys. Rev. B **1**, 4668 (1970).
- [Fer91] R. FERREIRA und G. BASTARD. *SSpinflip scattering of holes in semiconductor quantum wells*. Phys. Rev. B **43**, 9687 (1991).
- [Frö52] H. FRÖHLICH. *Interaction of Electrons with Lattice Vibrations*. Proc. of the Royal Soc. of London A **215**, 291 (1952).
- [Ger93] D. GERSHONI, J. OIKNINE-SCHLESINGER, E. EHRENFREUND, D. RITTER, R. HAMM und M. PANISH. *Minibands in the continuum of multi-quantum-well superlattices*. Phys. Rev. Lett. **71**, 2975 (1993).
- [Gir97] A. GIRNDT, F. JAHNKE, A. KNORR, S. W. KOCH und W. W. CHOW. *Multi-Band Bloch Equations and Gain Spectra of Highly Excited II-VI Semiconductor Quantum Wells*. Phys. Status Solidi B **202**, 725 (1997).
- [Gor08] R. GORDON. *Semiconductor Market Forecast (2Q08 Update)*. <http://www.gartner.com/it/page.jsp?id=684112>, May 2008. Web: <http://www.gartner.com/>.
- [Had05] J. HADER, J. MOLONEY und S. KOCH. *Microscopic evaluation of spontaneous emission- and Auger-processes in semiconductor lasers*. J. of Quantum Electronics **41**, 1217 (2005).
- [Haf05] W. HAFEZ und M. FENG. *Experimental demonstration of pseudomorphic heterojunction bipolar transistors with cutoff frequencies above 600 GHz*. Appl. Phys. Lett. **86**, 152101 (2005).
- [Hak75] B. HAKKI und T. PAOLI. *Gain spectra in GaAs double-heterostructure injection lasers*. J. Appl. Phys. **46**, 1299 (1975).

- [Han05] K. HANTKE, J. D. HEBER, C. SCHLICHENMAIER, A. THRÄNHARDT, T. MEIER, B. KUNERT, K. VOLZ, W. STOLZ, S. W. KOCH und W. W. RÜHLE. *Time-resolved photoluminescence of type-I and type-II (GaIn)As/Ga(NAs) heterostructures*. Phys. Rev. B **71**, 165320 (2005).
- [Har04] D. HARAME, S. KOESTER, G. FREEMAN, P. COTTREL, K. RIM, G. DEHLINGER, D. AHLGREN, J. DUNN, D. GREENBERG, A. JOSEPH, F. ANDERSON, J.-S. RIEH, S. ONGE, D. COOLBAUGH, V. RAMACHANDRAN, J. CRESSLER und S. SUBBANNA. *The revolution in SiGe: impact on device electronics*. Appl. Surface Science **224**, 9 (2004).
- [Hau04] H. HAUG und S. W. KOCH. *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors*. World Scientific, Singapore (2004).
- [Hva78] J. HVAM. *Direct recording of optical-gain spectra from ZnO*. J. Appl. Phys. **49**, 3124 (1978).
- [Ish08] K. ISHIMARU. *45 nm/32 nm CMOS: Challenge and perspective*. Solid-State Electronics **52**, 1266 (2008).
- [Kir99a] M. KIRA, F. JAHNKE, W. HOYER und S. KOCH. *Quantum theory of spontaneous emission and coherent effects in semiconductor microstructures*. Prog. Quantum Electron. **23**, 189 (1999).
- [Kir99b] M. KIRA, F. JAHNKE, W. HOYER und S. W. KOCH. *Quantum theory of spontaneous emission and coherent effects in semiconductor microstructures*. Prog. Quantum Electron. **23**, 189 (1999).
- [Kla01] P. J. KLAR, H. GRÜNING, J. KOCH, S. SCHÄFER, K. VOLZ, W. STOLZ, W. HEIMBRODT, A. M. K. SAADI, A. LINDSAY und E. P. O'REILLY. *(GaIn)(NAs)-fine structure of the band gap due to nearest-neighbor configurations of the isovalent nitrogen*. Phys. Rev. B **64**, 121203, September 2001.
- [Kän02] H. VON KÄNEL, M. KUMMER, G. ISELLA, E. MÜLLER und T. HACKBARTH. *Very high hole mobilities in modulation-doped Ge quantum wells grown by low-energy plasma enhanced chemical vapor deposition*. Appl. Phys. Lett. **80**, 2922 (2002).
- [Koc88] S. KOCH, N. PEYGHAMBARIAN und M. LINDBERG. *Transient and steady-state optical non-linearities in semiconductors*. J. Phys. C **21**, 5229 (1988).

- [Kri06] R. KRITHIVASAN, Y. LU, J. CRESSLER, J.-S. RIEH, M. KHATER, D. AHLGREN und G. FREEMAN. *Half-Terahertz Operation of SiGe HBTs*. IEEE Electron Device Lett. **27**, 567 (2006).
- [Kuna] B. KUNERT. Thin Solid Films ?, (accepted for publication).
- [Kunb] B. KUNERT, G. LUKIN, S. ZINKMANN, I. NEMETH, K. VOLZ und W. STOLZ. *Monolithic integration of Ga(NAsP)/(BGa)P multi quantum-well structures on (001) silicon substrate by MOVPE*. J. Cryst. Growth ?, (accepted for publication).
- [Kun06a] B. KUNERT, A. KLEHR, S. REINHARD, K. VOLZ und W. STOLZ. *Near room temperature electrical injection lasing for dilute nitride Ga(NAsP)/GaP quantum-well structures grown by metal organic vapour phase epitaxy*. Electron. Lett. **42**, 601 (2006).
- [Kun06b] B. KUNERT, K. VOLZ, J. KOCH und W. STOLZ. *Direct band gap Ga(NAsP)-material system pseudomorphically grown on GaP-substrate*. Appl. Phys. Lett. **88**, 182108 (2006).
- [Kur02] T. KURODA und A. TACKEUCHI. *Influence of free carrier screening on the luminescence energy shift and carrier lifetime of InGaN quantum wells*. J. Appl. Phys. **92**, 3071 (2002).
- [Kyh01] K. KYHM, R. A. TAYLOR, J. F. RYAN, T. SOMEYA und Y. ARAKAWA. *Analysis of gain saturation in $\text{In}_{0.02}\text{Ga}_{0.98}\text{N}/\text{In}_{0.16}\text{Ga}_{0.84}\text{N}$ multiple quantum wells*. Appl. Phys. Lett. **79**, 3434 (2001).
- [Lan07a] C. LANGE, S. CHATTERJEE, C. SCHLICHENMAIER, A. THRÄNHARDT, S. W. KOCH, W. W. RÜHLE, J. HADER, J. V. MOLONEY, G. KHITROVA und H. M. GIBBS. *Transient gain spectroscopy of (GaIn)As quantum wells: Experiment and microscopic analysis*. Appl. Phys. Lett. **90**, 251102 (2007).
- [Lan07b] C. LANGE, M. SCHWALM, S. CHATTERJEE, W. W. RÜHLE, N. C. GERHARDT, S. R. JOHNSON, J.-B. WANG und Y.-H. ZHANG. *The variable stripe-length method revisited: Improved analysis*. Appl. Phys. Lett. **91**, 191107 (2007).
- [Las84] R. LASSNIG. *Polar optical interface phonons and Fröhlich interaction in double heterostructures*. Phys. Rev. B **30**, 7132 (1984).
- [Lin88a] W.-Z. LIN, R. SCHOENLEIN, J. FUJIMOTO und E. IPPEN. *Femtosecond absorption saturation studies of hot carriers in GaAs and AlGaAs*. J. of Quantum Electronics **24**, 267 (1988).

- [Lin88b] M. LINDBERG und S. KOCH. *Theory of coherent transients in semiconductor pump-probe spectroscopy*. Opt. Soc. Am. B **5**, 139 (1988).
- [Lin88c] M. LINDBERG und S. W. KOCH. *Effective Bloch equations for semiconductors*. Phys. Rev. B **38**, 3342 (1988).
- [Mar59] P. C. MARTIN und J. SCHWINGER. *Theory of Many-Particle Systems. I*. Phys. Rev. **115**, 1342 (1959).
- [Muk95] S. MUKAMEL. *Nonlinear Optical Spectroscopy*. Oxford University Press (1995).
- [Neg04] L. D. NEGRO, P. BETTOTTI, M. CAZZANELLI, D. PACI?CI und L. PAVESI. *Applicability conditions and experimental analysis of the variable stripe length method for gain measurements*. Optics Comm. **229**, 337 (2004).
- [Nem08] I. NEMETH, B. KUNERT, W. STOLZ und K. VOLZ. *Heteroepitaxy of GaP on Si: Correlation of morphology, anti-phase domain structure and MOVPE growth conditions*. J. Cryst. Growth **310**, 1595 (2008).
- [NU06] D. NAVARRO-URRIOS, N. D. M. MELCHIORRI, L. PAVESI, C. GARCÍA, P. PELLEGRINO, B. GARRIDO, G. PUCKER, F. GOURBILLEAU und R. RIZK. *Optical losses and gain in silicon-rich silica waveguides containing Er ions*. J. Lumin. **121**, 249 (2006).
- [Olb91] G. R. OLBRIGHT, W. S. FU, A. OWYOUNG, J. F. KLEM, R. BINDER, I. GALBRAITH und S. W. KOCH. *cw and femtosecond optical nonlinearities of type-II quantum wells*. Phys. Rev. Lett. **66**, 1358 (1991).
- [Pau08] D. J. PAUL. *8-band k.p modeling of the quantum confined Stark effect in Ge quantum wells on Si substrates*. Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics) **77**(15), 155323 (2008).
- [Pav00] L. PAVESI, L. D. NEGRO, C. MAZZOLENI, G. FRANZÒ und F. PRIOLO. *Optical gain in silicon nanocrystals*. Nature **408**, 440 (2000).
- [Pav03] L. PAVESI. *Towards the first silicon laser*. NATO Science Series, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht (2003).
- [Pav04] L. PAVESI und D. LOCKWOOD. *Silicon Photonics*. Springer Berlin (2004).
- [Pey84] N. PEYGHAMBARIAN, H. M. GIBBS, J. L. JEWELL, A. ANTONETTI, A. MIGUS, D. HULIN und A. MYSYROWICZ. *Blue Shift of the Exciton*

- Resonance due to Exciton-Exciton Interactions in a Multiple-Quantum-Well Structure.* Phys. Rev. Lett. **53**, 2433 (1984).
- [Pre02] W. PRESS, S. TEUKOLSKY, W. VETTERLING und B. FLANNERY. *Numerical Recipes in C++*. Cambridge University Press, Cambridge (2002).
- [Qiu05] Y. N. QIU und J. M. RORISON. *An improved band-anticrossing model - including the positional dependence of nitrogen - for InGaAs/GaAs quantum well lasers.* Appl. Phys. Lett. **87**, 081111 (2005).
- [Ree04] G. T. REED und A. P. KNIGHTS. *Silicon Photonics: An Introduction*. John Wiley, Chichester, UK (2004).
- [Ron05] H. RONG, R. JONES, A. LIU, O. COHEN, D. HAK, A. FANG und M. PANICCIA. *A continuous-wave Raman silicon laser.* Nature **433**, 725 (2005).
- [Ros98] C. ROSENBLAD, H. R. DELLER, A. DOMMANN, T. MEYER, P. SCHROETER und H. VON KÄNEL. *Silicon epitaxy by low-energy plasma enhanced chemical vapor deposition.* J. of Vac. Sci. & Tech. A **16**, 2785 (1998).
- [San06] G. SANSONE, E. BENEDETTI, F. CALEGARI, C. VOZZI, L. AVALDI, R. FLAMMINI, L. POLETO, P. VILLORESI, C. ALTUCCI, R. VELOTTA, S. STAGIRA, S. D. SILVESTRI und M. NISOLI. *Isolated Single-Cycle Attosecond Pulses.* Science **314**, 443 (2006).
- [Sch90] P. SCHWARTZ und J. STURM. *Microsecond carrier lifetimes in strained silicon-germanium alloys grown by rapid thermal chemical vapor deposition.* Appl. Phys. Lett. **57**, 2004 (1990).
- [Sha71] K. L. SHAKLEE und R. F. LEHENY. *Direct Determination of Optical Gain in Semiconductor Crystals.* Appl. Phys. Lett. **18**, 475 (1971).
- [Sha89] L. SHAM. *Theories of electronic structure in semiconductor heterostructures.* Superlatt. Microstruc. **5**, 335 (1989).
- [Sha96] J. SHAH. *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures.* Springer Berlin (1996).
- [Sha99] W. SHAN, W. WALUKIEWICZ, J. AGER, E. HALLER, J. GEISZ, D. FRIEDMAN, J. OLSON und S. KURTZ. *Band anticrossing in GaInAs alloys.* Phys. Rev. Lett. **82**(6), 1221–1224 (1999).

- [Shi08] G. SHIFFLER. *PC Installed Base, Worldwide, 2004-2012*. <http://www.gartner.com/it/page.jsp?id=703807>, June 2008. Web: <http://www.gartner.com/>.
- [Sir92] C. SIRTORI, F. CAPASSO, J. FAIST, D. SIVCO, S.-N. CHU und A. CHO. *Quantum wells with localized states at energies above the barrier height: A Fabry-Perot electron filter*. Appl. Phys. Lett. **61**, 898 (1992).
- [Smi04] D. SMITH, J. PENDRY und M. WILTSHIRE. *Metamaterials and Negative Refractive Index*. Science **305**, 788 (2004).
- [Thr05] A. THRÄNHARDT, I. KUZNETSOVA, C. SCHLICHENMAIER, S. W. KOCH, L. SHTERENGAS, G. BELENKY, J.-Y. YEH, L. J. MAWST, N. TANSU, J. HADER, J. V. MOLONEY und W. W. CHOW. *Nitrogen incorporation effects on gain properties of GaInNAs lasers: Experiment and theory*. Appl. Phys. Lett. **86**, 201117 (2005).
- [Tse97] K. T. TSEN, D. K. FERRY, A. BOTCHKAREV, B. SVERDLOV, A. SALVADOR und H. MORKOÇ. *Direct measurements of electron-longitudinal optical phonon scattering rates in wurtzite GaN*. Appl. Phys. Lett. **71**, 1852 (1997).
- [Tsu06] S. TSUJINO, H. SIGG, G. MUSSLER, D. CHRASTINA und H. VON KÄNEL. *Photocurrent and transmission spectroscopy of direct-gap interband transitions in Ge/SiGe quantum wells*. Applied Physics Letters **89**, 262119 (2006).
- [Vur03] I. VURGAFTMAN und J. R. MEYER. *Band parameters for nitrogen-containing semiconductors*. J. Appl. Phys. **94**(6), 3675–3691, September 2003.
- [Wol99] M. V. WOLKIN, J. JORNE, P. M. FAUCHET, G. ALLAN und C. DELERUE. *Electronic States and Luminescence in Porous Silicon Quantum Dots: The Role of Oxygen*. Phys. Rev. Lett. **82**, 197 (1999).
- [Yu03] P. YU und M. CARDONA. *Fundamentals of Semiconductors*. Springer Berlin, 2. Auflage (2003).

Veröffentlichungen

- CHRISTOPH LANGE, SANGAM CHATTERJEE, BERNARDETTE KUNERT, KERSTIN VOLZ, WOLFGANG STOLZ, NILS C. GERHARD, MARTIN R. HOFMANN, AND WOLFGANG W. RÜHLE, *Gain characteristics and lasing of Ga(NAsP) multi-quantum well structures*, Physica Status Solidi c (zur Publikation angenommen).

Lasing is demonstrated for a Ga(NAsP) multi quantum-well structure grown pseudomorphically on GaP using metalorganic vapour-phase epitaxy. For a series of temperatures ranging from 8K to 290K, the sample emission characteristics are determined. With increasing pump power, a spectral narrowing of the emitted light along with a blue-shift is observed as the lasing threshold is approached. Above the threshold, the emission splits up spectrally into a pattern of clearly distinguishable modes. In addition, the potential of this material concerning room-temperature lasing is investigated by means of a variable stripe-length experiment, where a modal gain of 10 cm^{-1} is observed.

- SANGAM CHATTERJEE, CHRISTOPH LANGE, SWANTJE HORST, WOLFGANG DIEHL, GALINA KHITROVA, HYATT M. GIBBS, PETER BRICK, ANGELA THRÄNHARDT, STEPHAN W. KOCH, AND WOLFGANG W. RÜHLE, *Ultrafast response and carrier dynamics of near-infrared semiconductor laser systems*, Proc. SPIE (Invited Paper, 2008).

Semiconductor disk lasers display various desirable properties in the near infrared. These may be converted into the visible spectrum by intra-cavity frequency-doubling. Semiconductor disk lasers have been realized for laser-scanner-based RGB projection systems by high-speed modulation of the pump source. The modulation capabilities of the infrared laser determine most properties regarding modulation in this configuration, even for the intra-cavity frequency-doubled system. Thus, proper understanding of the near-infrared laser system is necessary in order to optimize modulation speed. In this context, we perform transient gain measurements on (GaIn)As/GaAs multi-quantum-well structures. The carrier density dynamics are obtained from spectral line shape analysis, i.e., comparison of experimental spectra with results from a microscopic theory. A similar structure is then integrated into

a semiconductor disk laser emitting at 1040 nm using 808 nm pump pulses with durations of 500 ns for barrier pumping. The onset of lasing is delayed until enough carriers are injected and carrier inversion sets in for low pump powers. For more elevated pump powers, lasing directly follows the pump pulse and consecutively, band filling is observed in photoluminescence. An overshoot of the photoluminescence is observed, when a resonator is present. The photoluminescence then subsequently is pinned at a quasi-stationary level within 80 ns or less, depending on the pump fluence. Both, band filling effects and higher-order transitions in the quantum wells are observed without resonator. Pauli blocking is excluded for the experimental conditions, i.e., long pump pulses, used. The experimental data are both qualitatively and quantitatively in good agreement with a rate equation model, which includes luminescence spectra and microscopic gain from the above microscopic theory.

- ECKHARD KÜHN, ANGELA THRÄNHARDT, STEPHAN W. KOCH, WOLFGANG STOLZ, SANGAM CHATTERJEE, CHRISTOPH LANGE, WENDEL WOHLLEBEN, MARCUS MOTZKUS, AND WOLFGANG W. RÜHLE, *Influence of chirp on the femtosecond excitation of a semiconductor microcavity laser*, Appl. Phys. Lett. **92**, 011107 (2008).
The time-resolved response of an optically excited vertical-cavity surface-emitting laser is measured for quadratically chirped pump pulses. The experimental results are compared with simulations based on microscopic calculations and qualitatively good agreement is obtained. The theoretical analysis shows that the observed dependence of both, the amplitude and the temporal evolution of the laser response, on the sign and amplitude of the quadratical chirp can be attributed to the excitation-induced dephasing process of the 1s plasma-resonance of the quantum-well barriers.
- CHRISTOPH LANGE, MICHAEL SCHWALM, SANGAM CHATTERJEE, NIELS C. GERHARDT, SHANE R. JOHNSON, JIANGBO WANG, YONG-HANG ZHANG, AND WOLFGANG W. RÜHLE, *The variable stripe-length method revisited: Improved analysis*, Appl. Phys. Lett. **91**, 191107 (2007).
The variable stripe length method described by Shaklee and Leheny, Appl. Phys. Lett. **18**, 475 (1971), is a straightforward way to determine the steady-state gain spectrum of laser material. Here, common sources of error are identified and several new, robust ways of calculating the gain from the data are presented. The advantages of these methods are underlined by applying them to data obtained from a Ga(AsSb)/GaAs/(AlGa)As heterostructure.
- CHRISTOPH LANGE, SANGAM CHATTERJEE, CHRISTOPH SCHLICHENMAIER, ANGELA THRÄNHARDT, JÖRG HADER, JEROME V. MOLONEY, GALINA KHITROVA, HYATT M. GIBBS, STEPHAN W. KOCH, AND

WOLFGANG W. RÜHLE, *Transient gain spectroscopy of (GaIn)As quantum wells: Experiment and microscopic analysis*, Appl. Phys. Lett. **90**, 251102 (2007).

Transient gain measurements are performed for (GaIn)As quantum well structures. Gain up to $gL = 2 \cdot 10^{-3}$ per quantum well is observed on a time scale of several hundred picoseconds. A microscopic theory quantitatively provides theoretical support and yields the carrier density as a function of time by matching the spectral shapes and intensities to the experiment. The decay rate of the population density is found to be proportional to the carrier density, which underlines the importance of monomolecular recombination processes.

- SANGAM CHATTERJEE, WENDEL WOHLLEBEN, CHRISTOPH LANGE, WOLFGANG STOLZ, MARCUS MOTZKUS, AND WOLFGANG W. RÜHLE, *Optimizing the performance of a vertical-cavity surface-emitting laser*, Appl. Phys. Lett. **89**, 151122 (2006).

The pulse response of an optically excited vertical-cavity surface-emitting laser is optimized by shaping the pump pulse. The temporal phase and amplitude of the excitation are adjusted by a learning loop with live spectrotemporal monitoring of excitation and emission pulses using a streak camera. The genetic algorithm of the loop is inspired by the optimization occurring in evolution in biology. The pulse response is such decreased from 4.8 to 2 ps. Emission intensity shows strong correlation with the pulse delay and also improves by 63 %.

- JÜRGEN VOLLMER, ATTILA GERGELY VEGH, CHRISTOPH LANGE, AND BRUNO ECKHARDT, *Vortex formation by active agents as a model for Daphnia swarming*, Phys. Rev. E **73**, 061924 (2006).

We propose a self-propelled particle model for the swarming of Daphnia that takes into account mutual repulsion and attraction to a center. Surprisingly, a vortex is formed only for an intermediate strength of propulsion. The phase diagram and the transitions between states with and without a vortex are analyzed, and the nature of the phase boundaries is discussed based on a linear stability analysis of the motion of individual swimmers. This allows us to identify various key parameters determining the characteristic features of the collective motion.

Weitere Veröffentlichungen jeweils zur Ultrakurzzeitverstärkung an Germanium, zum Lasing der Ga(NAsP)-Struktur auf Silizium und zu ultraschnellen Prozessen in Germaniumquantenfilmen sind in Vorbereitung.

Danksagung

Die Wurzeln der Bildung sind bitter, ihre Früchte aber sind süß.²

Diese von Aristoteles formulierte Weisheit beschreibt vielleicht am treffendsten das Gefühl, das sich beim Autor nach der Fertigstellung einer Diplom- oder Doktorarbeit einstellt. Rückblickend wirkt vieles leicht, was derzeit Mühe bereitete, und die meisten der im Laufe der Arbeit gewonnenen Erkenntnisse scheinen eine gewisse Selbstverständlichkeit anzunehmen. Der Schein jedoch trügt, denn die neu entdeckten Zusammenhänge und Lösungen, die schließlich in die Arbeit einfließen, wurden Stück für Stück - und teilweise sehr mühsam - erarbeitet. *Das Ganze ist mehr als die Summe seiner Teile²* - dies gilt für das Experiment genauso wie für die neuen Einsichten in die zugrunde liegenden Zusammenhänge, die es hervorbringt.

Selbst im Hirn des weisesten Mannes gibt es einen törichten Winkel.²

Was nach Aristoteles schon für den weisesten Menschen gilt, gilt mit Sicherheit erst recht für die restlichen, oft nicht immer so besonders weisen Menschen, zu denen ich gehöre. Ohne den Rat, die Sichtweisen und die Erfahrung von Kollegen und Freunden hätten viele Teile dieser Arbeit nicht ihre jetzige Form erhalten, manches wäre noch unbearbeitet und roh. An dieser Stelle möchte ich mich ganz herzlich bei Prof. Dr. Rühle für die Betreuung meiner Arbeit bedanken. Die zahlreichen Gespräche und Diskussionen, die fortwährend zum Vorankommen und zum Verständnis des Experiments sowie der Physik im Allgemeinen beigetragen haben, waren für das Gelingen dieser Arbeit entscheidend.

Der Beginn aller Wissenschaften ist das Erstaunen, dass die Dinge so sind, wie sie sind.²

Besonders im Labor gilt diese Erkenntnis, auch wenn man von Zeit zu Zeit erstaunt festzustellen meint, dass die Dinge eben *nicht* so sind, wie sie sind. Insbesondere in all diesen Momenten und auch sonst konnte ich mich stets auf die Erfahrung, die Ratschläge und auch die tatkräftige Unterstützung von Dr. Sangam Chatterjee verlassen, der auch für die zum Teil vollkommen neuen Probleme oft schon eine Idee mitbrachte. Nicht alle Fehler technischer Art selbst machen zu müssen, um daraus

²Aristoteles, (384 - 322 v. Chr.), griechischer Philosoph, Schüler Platos, Lehrer Alexanders des Großen von Mazedonien

zu lernen, spart nicht nur Zeit, sondern auch Nerven, die bei zwei Tugenden des Experimentalphysikers, Geduld und Beharrlichkeit, dringend gebraucht werden.

Ohne Freunde möchte niemand sein, auch wenn er alle möglichen Laser besäße.
Mit dieser freien Interpretation von Aristoteles³ möchte ich mich bei all meinen Kollegen und Freunden bedanken, die mich auf dem Weg der Promotion begleitet haben. Gerade wenn das Experiment gut funktioniert und man folglich viel zu viel Zeit im Labor verbringt, braucht man für die Freizeit eine Zerstreuung, die nichts mit Physik zu tun hat. Nichts ist nach geistiger Arbeit so erholsam, wie die Abwechslung. Nichts ist so heilsam, wie sich mit Freunden auszutauschen, denn *Lachen ist eine körperliche Übung von großem Wert für die Gesundheit*².

*Freude an der Arbeit lässt das Werk trefflich geraten.*²

Für die gute Zusammenarbeit möchte ich mich bei meinen Diplomanden Michael Schwalm, Niko Köster und Daniel Franzbach bedanken. Zusammen haben wir viele Probleme schneller und besser lösen können, als es im Alleingang möglich gewesen wäre - so waren es oft die Ideen, die Einwände oder manchmal auch die Zweifel des Einen, die den Anderen die Dinge nochmal hat überdenken lassen. Besonders mit Niko habe ich oft bis in die späten Abendstunden am Verstärkerlasersystem gearbeitet - seine Ideen und sein Einsatz waren für das Experiment von sehr großem Wert. Für die gute Zusammenarbeit mit Martin Schäfer und Christoph Schlichenmaier, die die mikroskopischen Verstärkungsrechnungen durchgeführt haben, möchte ich mich ebenso bedanken. Rüdiger Rink und Hermann Günther gilt mein Dank für die schnellen und professionellen Lösungen im Bereich der Feinmechanik, die man oft auch noch nach Feierabend umsetzen lassen konnte. Gleiches gilt für die Elektronikwerkstatt, denn Dr. Matthias Born und Carsten Schindler waren ebenso stets bereit, ihr Wissen über alles, was in irgendeiner Weise elektrischen Strom leitet, auch über die Lösung eines konkreten Problems hinaus mit mir zu teilen.

*Wahres Glück ist, seinen Geist frei zu entfalten.*²

Meinen Eltern gilt mein Dank für ihre Unterstützung und ihren Rat während meiner gesamten Ausbildungszeit. Sie haben mir mein Studium in dieser Form ermöglicht und dazu beigetragen, dass ich meinem Interesse an naturwissenschaftlichen Zusammenhängen in diesem Umfang nachgehen konnte.

³Ursprünglich: *Ohne Freunde möchte niemand sein, auch wenn er alle übrigen Güter besäße.*

Wissenschaftlicher Werdegang

CHRISTOPH LANGE

geboren am 13.04.1982
in Frankenberg, Hessen.

06/2001	Abitur, Johannes-Althusius-Gymnasium, Bad Berleburg (NRW)
10/2001 - 10/2005	Physikstudium, Philipps-Universität, Marburg/Lahn
10/2005 - 06/2006	Diplomarbeit, Philipps-Universität, Marburg/Lahn Arbeitsgruppe „Experimentelle Halbleiterphysik“ Prof. Dr. W. W. Rühle
seit 08/2006	Promotion, Philipps-Universität, Marburg/Lahn Arbeitsgruppe „Experimentelle Halbleiterphysik“ Prof. Dr. W. W. Rühle

